



Validation des bases de données de sections efficaces par l'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb entre 0,1 eV et 30 keV.

Méthodologie - Résultats

Luc Perrot

► To cite this version:

Luc Perrot. Validation des bases de données de sections efficaces par l'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb entre 0,1 eV et 30 keV. Méthodologie - Résultats. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2001. Français. NNT: . tel-00000933

HAL Id: tel-00000933

<https://theses.hal.science/tel-00000933>

Submitted on 21 Dec 2001

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

présentée par

LUC PERROT

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I

(Arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

Spécialité : Physique

**Validation des bases de données de sections efficaces
par l'utilisation d'un spectromètre à temps
de ralentissement au plomb entre 0,1 eV et 30 keV.
Méthodologie-Résultats**

Date de soutenance: 4 décembre 2001

Composition du jury :

D. HEUER	Directeur de thèse
G. BARREAU	Rapporteur
E. FORT	Rapporteur
F. GUNSING	Examineur
L. TASSAN-GOT	Examineur
J.M. LOISEAUX	Président de jury

Thèse préparée au sein de l'Institut des Sciences Nucléaires.

53, Avenue des Martyrs. 38026 Grenoble Cedex.

THÈSE

présentée par

LUC PERROT

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I

(Arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

Spécialité : Physique

**Validation des bases de données de sections efficaces
par l'utilisation d'un spectromètre à temps
de ralentissement au plomb entre 0,1 eV et 30 keV.
Méthodologie-Résultats**

Date de soutenance: 4 décembre 2001

Composition du jury :

D. HEUER	Directeur de thèse
G. BARREAU	Rapporteur
E. FORT	Rapporteur
F. GUNSING	Examineur
L. TASSAN-GOT	Examineur
J.M. LOISEAUX	Président de jury

Thèse préparée au sein de l'Institut des Sciences Nucléaires.

53, Avenue des Martyrs. 38026 Grenoble Cedex.

Remerciements

Je remercie tout d'abord Monsieur Joël CHAUVIN, directeur de l'Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire durant ces trois années, ainsi que Jean-Marie LOISEAUX qui m'a permis d'effectuer ma thèse dans le groupe *Réacteurs Hybrides* et d'avoir présidé le jury de thèse. Je remercie très chaleureusement Daniel HEUER qui a accepté de diriger ce travail de thèse et la confiance qu'il m'a accordé. Je remercie Chantal Blanc-Gonnet, secrétaire du DEA Méthodes expérimentales de la physique et instrumentation, pour sa très grande disponibilité aux bons moments.

Je souhaiterais aussi remercier les rapporteurs, Messieurs Éric FORT et Gérard BARREAU, d'avoir accepté d'être rapporteur et pour leurs critiques constructives et enrichissantes qu'ils ont pu me faire. Je remercie également Messieurs Franck GUNSING et Laurent TASSAN-GOT qui ont accepté de faire partie du jury.

La confiance que m'a accordé Jean-Marie LOISEAUX a été pour moi très stimulante, il a su développer et exploiter chez moi les bons traits de mon caractère. Le sujet de ma thèse s'est construit progressivement grâce aux échanges au sein du groupe et aux connaissances scientifiques de chacun, ces remerciements s'adressent donc à Roger BRISSOT (le *chef*), Jean-Bernard VIANO, Alain GIORNI, Olivier MÉPLAN (*ROOT's man*), Annick BILLEBAUD (pour son soutien, sa rigueur et ses relectures douloureuses) et Hervé NIFENECKER. Je remercie aussi Elsa MERLE, Éric LIATARD et Christian LE BRUN, ainsi qu'aux "non permanents" du groupe sans qui il serait difficile d'avancer : Maëlle KERVENO, Philippe WACHTARCZYK pour lequel je souhaite qu'il ait fait le bon choix, Alexis NUTTIN, Fabien PERDU, Joachim VOLLAIRE (bonne chance!). Une mention spéciale est attribuée à Denis KERDRAON, mon frère de chambrée qui a eu des difficultés à me modérer et pour qui je souhaite une bonne vie lyonnaise. Comme d'habitude, Sylvain DAVID (Monsieur *La Thèse*) ne peut être oublié.

Je remercie aussi les membres des groupes des services techniques (et oui, la communauté forme un tout!) avec lesquelles j'ai eu du plaisir à travailler, et plus particulièrement Michel FRUNEAU et Michel PLANET du service accélérateur, Jacques BERGER, Bernard BOYER et Jean BALLON du SDI, Guillaume SUTEAU du SERM ainsi que Christian Favro. Certains noms ne sont pas présents mais dès l'instant où j'ai travaillé avec eux, je les remercie chaleureusement.

Mes rencontres à Grenoble au cours de ces trois années ont été riches pour toutes sortes de raisons, je salue donc les patrons passés et à venir : Fred', Seb' de l'*ARB*, Auguste, Niko, Manuela, Thomas et les polyglottes Luisa, Stefania, Delia, Ilaria, Elena, Silvano et Alberto. Mes amis Croix-Roussiens et

“d’ailleurs” avec qui j’ai pu avoir des discussions souvent très engagés ont aussi réussi à me supporter et parfois à me relire: Julien, Jean-Marie, Michel l’anarchiste-royaliste, Jean-Baptiste le nouveau pro-nucléaire, Marlène, Marion, Émilie, Raphaël ainsi que les culturistes des pentes ... Enfin, je ne remercierai jamais suffisamment mes parents et Élodie avec qui j’ai parfois été dur.

Le plus sage est de chercher la joie dans une coupe de vin
de ne pas trop nous préoccuper du présent ni du passé
enfin, même pour un instant, de délivrer des entraves de la raison
cette âme qu'on nous prête et qui gémit dans sa prison.

Les Roubaïates d'Omar Kháyyám (1048-1122).

Table des matières

Introduction	1
1 Problématique des données nucléaires et de la simulation	3
1.1 État des projets des réacteurs nucléaires	
du futur	3
1.2 Un grand nombre de noyaux mis en jeu dans ces grands projets	4
1.3 Les expériences actuelles	5
1.3.1 Le réacteur de recherche MASURCA	5
1.3.2 Les expériences de mesure de section efficaces	5
1.4 Les bases de données	6
1.4.1 L'état de l'art	6
1.4.2 Les difficultés posées par l'évaluation	7
1.4.3 Les désaccords entre les bases de données	7
1.5 De la nécessité de faire de nouvelles mesures :	
mais lesquelles?	7
1.6 Apports récents des simulations	8
1.7 Méthode du spectromètre à temps de ralentissement	8
2 Les outils utilisés	11
2.1 Dispositif expérimental	11
2.1.1 Le générateur de neutrons	11
2.1.2 La production de neutrons	13
2.1.3 Le spectromètre à temps de ralentissement	14
a - Le bloc de plomb	14
b - Physique du spectromètre à temps de ralentissement	16
2.1.4 Dispositif pour le monitoring de la source de neutrons	21
2.1.5 Détecteurs pour la détermination du flux de neutrons	24
2.1.6 Détection des captures neutroniques	28
2.1.7 Électronique associée et système d'acquisition de données	30
2.1.8 Procédure et conditions expérimentales	30

2.1.9	Structure et stockage des données expérimentales	32
2.2	Outils de simulation	33
2.2.1	Introduction du code de simulation MCNP	33
2.2.2	Description de l'ensemble du dispositif expérimental dans le code MCNP . . .	33
2.2.3	Paramètres fondamentaux de la simulation: les bases de données	35
2.3	Conclusions	35
3	Forme et qualité de la source de neutrons	37
3.1	Spectres en temps et en amplitude des jonctions silicium	37
3.1.1	Spectres en amplitude	37
3.1.2	Spectres en temps	39
3.2	Forme temporelle de l'impulsion de neutrons	40
3.3	Fraction de neutrons émis hors impulsion	40
3.4	Stabilité de la fréquence des impulsions de GENEPI	43
4	Étude du flux de neutrons : validation expérimentale du flux simulé	45
4.1	Mesure absolue de la production de neutrons de 14 MeV	45
4.1.1	Nombre de neutrons émis par la cible de TiT	45
	a - Utilisation de la réaction (n,2n)	46
	b - Utilisation de la réaction (n,np)	47
	c - Utilisation des simulations	48
	d - Le flux de neutrons absolu: conclusion	48
4.1.2	Propagation des neutrons source dans le plomb	50
4.2	Caractérisation du bloc de Plomb	53
4.2.1	La relation énergie-temps à partir de la simulation	53
	a - La matrice du flux de neutrons $\Phi(E,t)$	53
	b - Détermination de la valeur de K par la simulation	54
	c - Dispersion associée à la relation énergie-temps	59
4.2.2	Détermination expérimentale de la corrélation temps de ralentissement-énergie et comparaison avec la simulation des taux de capture	60
4.3	Le flux de neutrons en fonction du temps et de l'énergie	65
4.3.1	Critères d'analyse des données expérimentales et des simulations du flux de neutrons	65
4.3.2	Description des flux de neutrons expérimentaux et simulés	70
	a - Comparaison des résultats expérimentaux et simulés du détecteur à gaz ^3He	70
	b - Flux de neutrons déduit du taux de fission de l' ^{233}U	74
	c - Confirmation du choix de la base de données par le taux de capture sur l'or	81
4.4	Étude du flux de neutrons: conclusions	82

5	Extraction des taux de réaction (n,γ) expérimentaux et simulés	83
5.1	Les données expérimentales	83
5.1.1	Validation de la reproductibilité des mesures	83
5.1.2	Origine des temps de l'impulsion de neutrons	84
5.1.3	Spectre en amplitude et en temps du détecteur CeF_3	85
5.1.4	La contribution des empilements dans les spectres	86
5.1.5	Identification du bruit de fond	88
5.1.6	La reconstruction du bruit de fond	89
5.1.7	Procédure expérimentale de construction du spectre de taux de capture	91
	a - La normalisation	91
	b - La radioactivité et l'activation des matériaux	91
	c - Les corrections du bruit de fond	93
	d - Soustraction du bruit de fond au signal	96
	e - Estimation des erreurs	96
5.1.8	Efficacité du détecteur CeF_3	98
	a - Variations du gain pendant le temps de ralentissement	98
	b - Caractérisation du spectre d'amplitude en fonction du temps de ralentissement t_r	99
	c - Étude théorique de la réponse en amplitude	101
	d - L'efficacité du détecteur CeF_3 : conclusions	104
5.1.9	Caractéristiques des échantillons utilisés	106
5.2	Les simulations : données extraites et traitements	107
5.2.1	Les données des simulations	107
5.2.2	La normalisation des taux de capture simulés à l'expérience	107
5.2.3	L'effet hydrogène	108
5.3	Conclusion	111
6	Analyse des expériences de capture :	
	Comparaison avec les résultats des simulations	113
6.1	Conversion en énergie des spectres expérimentaux et simulés par la relation E-T . . .	113
6.2	Principes de comparaison	114
6.3	Résultats concernant les matériaux de référence	116
6.3.1	Résultats avec les échantillons d'or	116
6.3.2	Résultats avec les échantillons d'argent	121
6.3.3	Résultats avec les échantillons de tantale	124
6.3.4	Résultats avec les échantillons d'indium	129
6.4	Résultats pour des matériaux présents dans les cœurs de réacteurs	135
6.4.1	Les échantillons de thorium	135
6.4.2	La capture sur l'uranium naturel	137

6.4.3	La capture sur le technétium	137
6.5	Résultats pour des noyaux présents dans les structures des réacteurs	140
6.5.1	L'échantillon de tungstène	140
6.5.2	L'échantillon de molybdène	142
6.5.3	L'échantillon de nickel	144
6.5.4	L'échantillon de manganèse	145
6.6	Résumé et enseignements	147
Annexe		153
A Sections efficace des nucléides utilisés dans l'expérience		155
Bibliographie		161
Liste des figures		167
Liste des tableaux		173

Introduction

L'énergie nucléaire est confrontée au problème du stockage en sécurité de déchets radioactifs à longue durée de vie, en particulier des actinides radiotoxiques. Des propositions ont été faites récemment pour transmuter (ou “incinérer”) ces déchets, soit dans des réacteurs critiques, soit dans des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur. Conjointement, la recherche autour de ces grands projets a entraîné une forte activité autour des simulations numériques de neutronique. Les simulations, très complètes et rigoureuses, de ces réacteurs complexes ont aussi relancé fortement les travaux autour des mesures de sections efficaces des matériaux mis en jeu dans de tels systèmes puisque la précision des simulations est maintenant limitée par la précision des données nucléaires. Les évaluations des données nucléaires trouvent ainsi une place cruciale dans les études de scénarios des réacteurs du futur.

Les travaux sur l'évaluation des données sont loin d'être récents, ceux-ci débutèrent dans la deuxième moitié du XX^{ème} siècle. Aussi bien la recherche fondamentale, que la recherche militaire ou l'industrie nucléaire en fort développement réclamaient déjà des données nucléaires précises, principalement des sections efficaces neutroniques et photoniques, mais également des données de structure nucléaire et de décroissance. Les données pour des réactions nucléaires induites par des neutrons d'énergie thermique furent évaluées en priorité, mais le champ grandissant de la technologie nucléaire, des réacteurs à fission thermique et rapide amena une extension correspondante du domaine d'énergie d'intérêt.

Plus récemment, dans le contexte de la loi de 1991 portant sur la gestion des déchets nucléaires [1], une ouverture s'est effectuée dans le domaine. Elle a permis de donner une forte impulsion aux études sur la transmutation d'éléments ou leur incinération afin de réduire leur radiotoxicité à long terme. Les nouveaux concepts de réacteurs avec notamment les ADS (Accelerator Driven System), les RSF (Réacteurs à sels fondus) et les nouveaux combustibles envisagés étendent la gamme des éléments dont il est nécessaire de préciser les sections efficaces, ou encore d'en connaître le degré d'incertitude. D'importantes collaborations se sont créées, constituées aussi bien d'expérimentateurs que de théoriciens et d'évaluateurs afin de partager et d'améliorer les données existantes. L'informatique prenant une place croissante depuis une période récente, celle-ci a imposé naturellement une certaine unification de ces données. Cela a alors permis de mettre clairement en évidence qu'entre certaines données évaluées des désaccords existaient, et de mettre ainsi l'accent sur leurs insuffisances.

C'est dans cette direction qu'est dirigé ce travail. Nous avons cherché à étudier ces insuffisances

et à y remédier rapidement avec une expérimentation légère et rapidement exploitable. L'acquis du groupe de Grenoble lors de l'expérience TARC [2] a incité l'acquisition d'un massif de plomb. Ce spectromètre à temps de ralentissement en plomb a été couplé à un générateur de neutrons pulsé. Comme nous le verrons, cela nous a permis d'effectuer des mesures rapides dans une large région d'énergie comprise entre 0,1 eV et 30 keV. Nous n'avons pas pour objectif d'extraire les sections efficaces de capture d'échantillons ni de dire pourquoi des désaccords sont observés entre les bases de données. L'extraction des sections efficaces de capture aurait demandé un très important travail supplémentaire. Les deux objectifs que nous avons pu atteindre sont les suivants:

- Développer une méthodologie expérimentale et mesurer des taux de réaction avec une grande précision.
- Effectuer des simulations du spectromètre à temps de ralentissement en plomb permettant un calcul très précis des taux de réaction attendus à partir des bases de données.
- Tester et valider ainsi des sections efficaces de capture et de diffusion extraites de plusieurs bases de données.
- Obtenir des résultats immédiatement exploitables en termes de calculs neutroniques. Ces résultats permettent à la fois de dimensionner les erreurs maximales, d'en indiquer la localisation énergétique et d'en faire une correction au premier ordre.

Notre travail s'inscrit dans le cadre du groupement de recherches GEDEON (Gestion des Déchets par des Options Nouvelles) regroupant le Commissariat à l'Énergie Atomique, Électricité de France, la société Framatome et le Centre National de la Recherche Scientifique. Le groupe de Grenoble est investi plus particulièrement dans les études de la physique des réacteurs hybrides et des réacteurs à sels fondus à travers des travaux expérimentaux auprès du réacteur MASURCA (MAquette SURgénératrice à CAdarache) et d'études de scénarios pour le nucléaire du futur ainsi que dans une collaboration avec le groupe systèmes hybrides du Centre d'Études Nucléaires de Bordeaux Gradignan dans le cadre de mesures de sections efficaces du cycle thorium au-dessus de 100 keV.

Dans ce travail, nous détaillerons dans un premier temps la problématique actuelle des données nucléaires (chapitre 1). Nous décrirons ensuite notre dispositif expérimental ainsi que la méthode de simulation utilisée (chapitre 2). Une étude approfondie du flux de neutrons dans le massif de plomb nous a permis de montrer notre aptitude à tester la section efficace de diffusion avec une grande précision (chapitre 4). Le chapitre 5 décrira l'analyse des mesures de capture nécessaires pour permettre les comparaisons avec les simulations effectuées avec différentes bases de données. Nous traiterons ensuite ces comparaisons systématiquement entre les simulations et l'expérience sur différents éléments dans le chapitre 6. Nous illustrerons l'intérêt de disposer de mesures sur plusieurs épaisseurs d'échantillons pour la validation des bases de données de sections efficaces. Cet ensemble de mesures a permis de bien mettre en évidence les capacités d'un tel dispositif expérimental qui s'avère pouvoir donner des résultats expérimentaux avec une précision de l'ordre de 5%.

Chapitre 1

Problématique des données nucléaires et de la simulation

1.1 État des projets des réacteurs nucléaires du futur

Deux projets très innovants ont été les nouveaux moteurs dans les dix dernières années de la recherche nucléaire civile. Il s'agit des projets de réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur proposés par C.D. BOWMAN [3] (réacteur à sels fondus dédié à l'incinération de déchets produits par la filière REP actuelle) et C. RUBBIA [4] (réacteur refroidi au plomb avec production d'énergie). De plus, la filière à sels fondus critique, étudiée à partir des années soixante à Oak-Ridge [5], trouve aussi en France un important regain d'intérêt à travers le concept AMSTER (Actinide Molten Salt TransmutER) proposé par EDF [6] et dont les potentialités sont aussi évaluées depuis une période récente par le groupe réacteurs hybrides de l'ISN [7]. Dans ce même mouvement d'idées, de nouveaux concepts de réacteurs évaluent les possibilités d'incinération des actinides mineurs et des produits de fissions à vie longue. Ces projets entrent dans le cadre des choix de filières pour le réacteur du futur.

Ces projets présentent de grandes variabilités dans leurs objectifs (incinération, production d'énergie ...), leur structure, leurs contraintes, leur géométrie, leurs combustibles possibles, leur spectre de neutrons (thermique, épithermique, rapide) ... Il ne s'agit bien évidemment pas ici de décrire en détails ces projets mais bien de mettre en avant un aspect fondamental qui relie l'ensemble de ces projets : celui du foisonnement des axes (ré)ouverts dans de nombreux domaines de recherche. L'interaction de l'ensemble des acteurs de la recherche doit logiquement exister : les champs d'études concernent :

- le retraitement : recyclage des combustibles solides ou liquides (sels fondus),
- la chimie en ligne : principalement sur les réacteurs à sels fondus,
- la physique du solide et des matériaux : corrosion induites par le plomb, la fenêtre d'entrée du faisceau pour les ADS, la tenue aux forts burn-up des nouveaux combustibles,
- la physique des accélérateurs : projet IPHI (Injecteur de Protons de Haute Intensité) ...

- la physique des réacteurs : expériences sur réacteur de puissance nulle et étude de scénarios par simulation,
- la physique fondamentale : mesures de sections efficaces, évaluations, extensions des données au-dessus de 20 MeV.

Notre axe de travail décrit dans ce manuscrit se rattache à une partie de ce dernier point.

1.2 Un grand nombre de noyaux mis en jeu dans ces grands projets

Ces réacteurs du futur intègrent un grand nombre de matériaux qui peuvent être classés simplement de la façon suivante :

- les combustibles : traditionnels : ^{235}U - ^{238}U , MOX, U-Pu ; nouvelles filières (réacteurs hybrides et réacteurs à sels fondus dans un spectre à neutrons rapides ou thermiques) : Th-Pu, ^{232}Th - ^{233}U [8],
- les actinides : le neptunium, le plutonium, l'américium, le curium. Pour ces noyaux, il faut rappeler que certains d'entre eux ont des périodes très longues et qu'ils auront une radiotoxicité induite importante. Leur présence dans les cœurs des réacteurs en fonctionnement pourra, par capture sur ces noyaux, créer des noyaux dont l'activité est importante, leur manipulation sera plus contraignante,
- les produits de fissions : d'une part les produits de fission à vie longue (PFVL) tel que le ^{99}Tc , ^{129}I ... dont il faut envisager la transmutation, d'autre part les produits de fission à vie courte (inférieure à 30 ans) qu'il faudra entreposer pendant 600 ans,
- les modérateurs et caloporteurs : l'eau pour les réacteurs à eau pressurisée, le plomb ou le graphite dans les réacteurs hybrides et les réacteurs à sels fondus (RSF). Pour l'ensemble des modérateurs, les propriétés neutroniques, les conditions d'utilisation et de manipulation seront largement différentes d'un système à l'autre.
- les matériaux de structure : les matériaux utilisés sont différents suivant les conditions physico-chimiques du réacteur : gaine des crayons supportant les combustibles (zircaloy), matériaux utilisés dans les canaux des réacteurs à sels fondus. Les matériaux des alliages des aciers existent en très grandes quantités (Fe, Ni, W, Mo, Cr ...). Ces aciers doivent être résistants à la corrosion (ex. : le plomb), ils doivent répondre à certains critères de dommages aux matériaux [9].

Nous pouvons constater qu'un très grand nombre de matériaux doit être pris en considération dans les réacteurs. Une bonne connaissance de leurs propriétés neutroniques est clairement nécessaire pour leur optimisation et la compréhension détaillée de la neutronique, de l'évolution du combustible, de l'activation et de la fatigue des structures.

1.3 Les expériences actuelles

1.3.1 Le réacteur de recherche MASURCA

Le réacteur de recherche MASURCA (MAquette de SURgénérateur à CAdarache), construit au départ pour les études liées à Superphénix, est maintenant utilisé dans le cadre des études sur les réacteurs hybrides [10]. Il doit permettre l'étude de la neutronique des nouveaux combustibles dans un milieu sous-critique avec une injection de neutrons dans le cœur. Il doit permettre aussi de valider les codes de calculs existant et utilisés par la communauté dans le mode de fonctionnement sous-critique [11]. Dans le cadre des études sur la validation des bases de données des éléments, il conserve néanmoins la complexité des réacteurs de puissance, c'est à dire d'un très grand nombre de matériaux présents. Il apparaît donc très utile d'envisager des méthodes expérimentales qui permettent de découpler les études neutroniques liées à la validation des codes de simulations des propriétés neutroniques des matériaux mis en jeu.

1.3.2 Les expériences de mesure de section efficaces

Les principaux sites où sont effectuées des mesures de sections efficaces avec une résolution en énergie importante sont :

- GELINA¹ à Geel en Belgique [12] basé sur une méthode de temps de vol.
- n-TOF au CERN dont le programme expérimental débute [13, 14]. La mesure d'une longue liste de nucléides a été prévue. Celle-ci inclut aussi bien des actinides mineurs que des produits de fission ainsi que des matériaux de structure et des matériaux absorbants. Ces mesures incluent les mesures de sections efficaces de capture et de fission.
- l'accélérateur Van de Graaff du Centre d'études nucléaires de Bordeaux ainsi que le Tandem d'Orsay auprès desquels se déroule un programme de mesure sur la filière thorium [15, 16].
- ORELA (Oak Ridge Electron Linear Accelerator) qui fonctionne depuis 1968: plus de 40% des évaluations de la base de données ENDF/B-VI (cf. section 1.4.1) proviennent de mesures faites sur cette installation [17].

Ces grands programmes ont une liste importante de noyaux entrant dans la problématique des réacteurs du futur pour lesquels des mesures sont prévues. Les mesures peuvent réclamer des temps de faisceau relativement longs. La production de résultats expérimentaux avec une grande résolution en énergie et exploitable pour l'évaluation demande un travail d'extraction des données et d'analyse qui peut prendre beaucoup de temps. En effet, les données mesurées sont corrigées de divers effets comme le bruit de fond, les impuretés, l'efficacité des détecteurs ou encore des diffusions multiples, etc.

1. Geel Electron LINear Accelerator de l'IRMM (Institute for Reference Materials and Measurements)

1.4 Les bases de données

1.4.1 L'état de l'art

La procédure d'évaluation des données nucléaires combine les mesures expérimentales avec les modèles théoriques proposant une bonne appréciation des valeurs réelles des données des réactions nucléaires fondamentales. Un effort d'évaluation est mis en œuvre pour déterminer des sections efficaces de réaction et pour fournir une complète représentation de toutes les sections efficaces, des rendements de production et des distributions angulaires et en énergie des produits des réactions induites par neutrons. Ces évaluations sont nécessaires pour les calculs des performances des systèmes nucléaires. De plus, elles doivent être dans un format standard lisible par les codes de calcul. Aujourd'hui, la plupart des évaluations complètes utilisent le format ENDF (Evaluated Nuclear Data File) : développé au départ aux Etats-Unis, ce format est employé maintenant par toute la communauté.

Les évaluations individuelles des éléments sont combinées puis compilées dans des bibliothèques permettant leur emploi par les codes de calculs. Ces bibliothèques sont identifiées par un nom caractéristique avec un numéro de version pour en faciliter l'identification. Les plus importantes des bibliothèques disponibles au format ENDF sont les suivantes² :

- ENDF/B-VI : c'est la bibliothèque standard des Etats-Unis. Elle est contrôlée par le "Cross Section Evaluation Working Group" (CSEWG) du département à l'énergie américain et elle est maintenue au National Nuclear Data Center (NNDC) du Brookhaven National Laboratory (BNL). Celle-ci propose 408 fichiers évalués (éléments naturels et isotopes)³.
- JENDL3.2 (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) est la bibliothèque standard pour les applications à la fission du Japon. Elle est contrôlée par le Japanese Atomic Energy Research Institute (JAERI). Dans cette bibliothèque : 340 évaluations sont accessibles.
- JEF2.2 (Joint Evaluated File) est la bibliothèque standard de la communauté européenne, elle est administrée par la Nuclear Energy Agency (NEA) Data Bank à Paris [18]. Le projet JEF est orienté au départ vers les applications nucléaires. Elle propose 313 évaluations d'éléments naturels et d'isotopes. La version JEF3 doit être disponible dans le courant de l'année 2002.
- BROND-2 est la bibliothèque russe : elle dispose de 121 fichiers évalués au format ENDF.
- CENDL-2 est le standard chinois proposant l'accès à 54 fichiers d'évaluations.

Il existe d'autres bibliothèques, mais depuis une dizaine d'années une importante homogénéisation tend à s'effectuer entre l'ensemble des bibliothèques dans le monde à travers de fortes collaborations et des accès simplifiés aux données. Un effort de cohérence est en cours au niveau mondial, celui-ci est coordonné par la NEA.

2. Les fichiers évalués au format ENDF de ces bibliothèques sont accessibles sur le site internet : <http://t2.lanl.gov/data/data.html>

3. Nous utiliserons la version ENDF/B-VI.5 pour les simulations utilisant cette base de données. La version ENDF/B-VI.6 doit être très bientôt disponible.

1.4.2 Les difficultés posées par l'évaluation

L'évaluation des données pour un noyau ou un élément, outre qu'elle requiert naturellement des données expérimentales, impose un processus complexe de correction et d'analyse de ces données avant qu'elles soient accessibles aux utilisateurs. De plus, les données expérimentales ne peuvent être utilisées directement dans les calculs. L'information de ces résultats est fragmentaire. Une évaluation complète d'un élément réclame l'ensemble des processus physiques (sections efficaces totales et partielles, décroissance ...) pour chaque élément. Une étape d'analyse est donc nécessaire pour compléter les mesures et produire le jeu de données cohérentes [19].

De plus, un retour d'expérience ("feed-back") des données évaluées est nécessaire grâce à des benchmarks simulants les expériences. Cela permet de tester ces évaluations en identifiant leurs insuffisances éventuelles et de les actualiser au fur et à mesure que de nouvelles données expérimentales sont obtenues. Le temps nécessaire à une évaluation auquel s'ajoute le retour d'expérience ("feed-back") peut être de plusieurs années.

1.4.3 Les désaccords entre les bases de données

Les différentes bases de données existantes et disponibles au format ENDF utilisable par la plupart des codes de calcul présentent parfois des désaccords importants. Ces désaccords sont bien souvent liés à la région d'énergie des résonances non résolues pour les données inférieures à 20 MeV dans le cas des sections efficaces élastique et de capture. Certains noyaux de la filière thorium envisagée pour les ADS ou les RSF sont bien souvent mal connus, voire dépourvus d'évaluation en raison des très grandes difficultés que peut représenter leur expérimentation (par exemple dans les cas du Pa, Cm, Np). Il faut noter que les désaccords peuvent également provenir des données expérimentales sur lesquelles l'évaluateur se base pour produire les données évaluées. Les figures regroupées dans l'annexe A présentent quelques exemples de sections efficaces de capture extraites des bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2.

1.5 De la nécessité de faire de nouvelles mesures : mais lesquelles ?

Les processus physiques principaux des ADS et des RSF ou plus généralement des réacteurs incinérateurs sont dévolus à la transmutation des actinides et requièrent de nouvelles ou de meilleures données qui peuvent être classées en quatre groupes :

- les réactions liées à la spallation (région d'énergie au-dessus de 20 MeV) : réactions $(p, xn+X)$, (n, xn) ...
- les réactions de fission, élastique, de capture, $(n, 2n)$, inélastiques et les sections efficaces intégrales différentielles des actinides de durée de vie supérieure à quelques jours. Une bonne précision (supérieure à 5%) et une bonne résolution est requise.

- les sections efficaces des produits de fission à vie longue afin d’optimiser leur transmutation. Les sections efficaces à connaître sont : (n,γ) , $(n,\text{élas})$, (n,tot) et (n,abs) à toutes les énergies.
- les processus dans le modérateur et le caloporteur et les matériaux de structure : Pb, Bi, Fe ...

Un tel besoin en nouvelles données expérimentales ne peut logiquement pas être satisfait dans les délais imposés par la législation française par la loi de 1991 [1] imposant aux chercheurs français des grandes composantes (CEA, EDF, Framatome, CNRS) de répondre au devenir des déchets produits dans les centrales nucléaires actuelles. Les scientifiques doivent être capables de donner des éléments de réponse à cette problématique d’ici 2006. Nous observons donc bien l’incompatibilité entre les impératifs (légitimes) de la loi et l’ensemble du processus “mesures expérimentales+évaluations+simulations”.

Un choix judicieux sur de nouvelles mesures de données nucléaires doit donc être effectué. Le programme n-TOF du CERN propose par exemple une sélection de noyaux à mesurer en priorité [14]. Cette liste s’inspire notamment de la “high priority request list” proposée par la NEA [20].

1.6 Apports récents des simulations

Un très important effort est fait dans le monde pour mieux comprendre et optimiser les différents projets de réacteurs du futur (ADS, sels fondus ...). Les structures de ces réacteurs sont très détaillées et imposent des simulations très sophistiquées. Ces simulations requièrent des algorithmes précis et compliqués pour décrire en détail les structures à 3 dimensions de ces réacteurs, le transport des neutrons dans les cœurs, la modération, les réactions nucléaires induites et les conséquences de l’évolution des matériaux en différents points des réacteurs [21, 7]. De plus, les méthodes Monte-Carlo alliées à une augmentation considérables des puissances de calcul disponibles permettent d’envisager des simulations numériques d’une précision impensable il y a seulement 10 ans. Les algorithmes et les codes adéquats sont disponibles (par exemple : MCNP) ou vont l’être (le code SPARTE du CEA). Par conséquent, la précision des résultats des simulations est maintenant dépendante de celle des bases de données nucléaires ainsi que de la façon dont les données sont introduites dans les codes.

1.7 Méthode du spectromètre à temps de ralentissement

Ainsi, la question qui se pose à nous n’est pas de tester ni de valider les codes de simulation et plus particulièrement MCNP [22] mais de chercher à tester les données de bases.

Pour cela, nous avons cherché à découpler la problématique des simulations des cœurs de réacteurs de celle de la validation des bases de données. Nous avons pu avoir accès à un dispositif expérimental à l’Institut des Sciences Nucléaires couplant un générateur de neutrons pulsé avec un massif de plomb. Des simulations très précises de l’ensemble du dispositif expérimental ont été effectuées avec le code MCNP. Les comparaisons systématiques des résultats expérimentaux et des simulations utilisant les différentes bases de données accessibles peuvent alors nous permettre de :

- faire des mesures de profils de taux de réaction sur des temps courts (une douzaine d’heures)

- sur des échantillons de dimensions représentatives des matériaux employés dans les réacteurs,
- faire des simulations systématiques dans les mêmes conditions que l'expérience,
 - tester la validité des bases de données en fonction de l'énergie des neutrons,
 - choisir la bonne base de données à utiliser pour les simulations des scénarios des réacteurs du futur,
 - proposer des corrections sur la base de données identifiée comme la plus adaptée. Celles-ci sont immédiatement applicables dans les codes de calculs. Nous pouvons faire remarquer qu'entre 0,1 eV et 30 keV, quel que soit le type de réacteur, le taux de réaction étant important, des corrections pourront avoir des effets importants sur la neutronique du cœur.
 - d'étudier très précisément les propriétés de ralentissement des milieux : plomb, carbone-fluor, mais aussi éventuellement sodium, carbure de silicium ou de tout autre matériau intervenant dans le cœur ou dans le réflecteur.

Chapitre 2

Les outils utilisés

2.1 Dispositif expérimental

2.1.1 Le générateur de neutrons

C'est dans le cadre du programme expérimental MUSE (MULTiplication de Source Externe) [23] auquel prennent part entre autres le CNRS et le CEA que le GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense (GENEPI) a été développé à l'Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble [24]. Ce générateur est destiné à l'étude de la physique relative aux réacteurs hybrides et à l'étude des propriétés neutroniques par spectromètre à ralentissement. Il est adapté à l'injection d'impulsions de neutrons au cœur du réacteur de recherche MASURCA. C'est durant le deuxième semestre 1999, pendant la qualification du GENEPI, que les expériences décrites dans le présent manuscrit ont été effectuées. Nous allons décrire ici les principales caractéristiques d'un tel générateur [25, 26]. Les figures 2.1 et 2.2 illustrent la ligne de faisceau.

La source d'ions est une source duoplasmatron : elle permet de transformer une partie du gaz deutérium qui lui est injecté en impulsions d'ions deutons (D^+). Les ions ainsi produits sont extraits par un orifice limitant le flux de gaz provenant de la source. La pulsation de la machine est celle de la source. La durée des impulsions est celle des décharges entre l'anode et la cathode qui durent environ une microseconde. Les ions deutérium sont ensuite accélérés à travers un champ statique de 1,4 MVolt/m.

Un séparateur de masses est ensuite placé sur la ligne. Cet aimant spectromètre de 45° sépare les différentes masses produites par la source (ions D^+ et D_2^+). Un diaphragme d'analyse laisse passer les ions D^+ . Ce séparateur est indispensable pour les mesures de physique. En effet, les ions moléculaires D_2^+ , dont la vitesse après la zone accélératrice est plus faible que celle des D^+ , arriveraient après ces derniers sur la cible de production de neutrons et dégraderaient la durée des impulsions. Nous verrons que cet aimant nous donne une information supplémentaire sur la structure de la source de neutrons (cf. section 2.1.4).

En sortie de l'aimant sont placés des "beam steerers" permettant le centrage du faisceau horizontalement et verticalement. Des quadrupôles sont aussi placés sur le passage des ions permettant leur

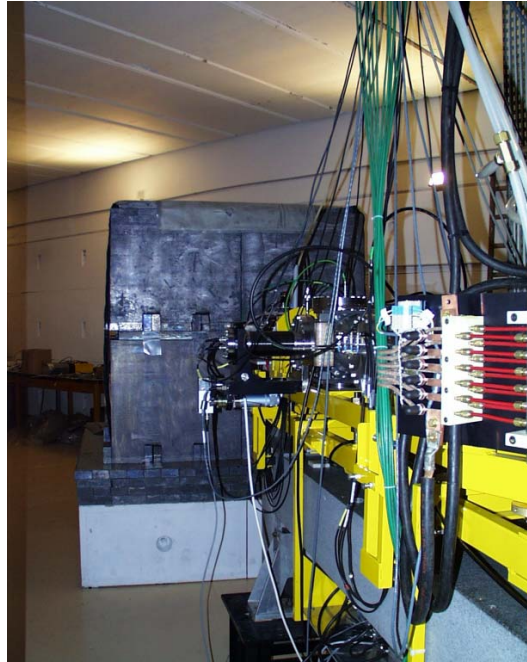


FIG. 2.1 – *Photo du dispositif expérimental : une partie du GENEPI en premier plan et le bloc de plomb au deuxième plan.*

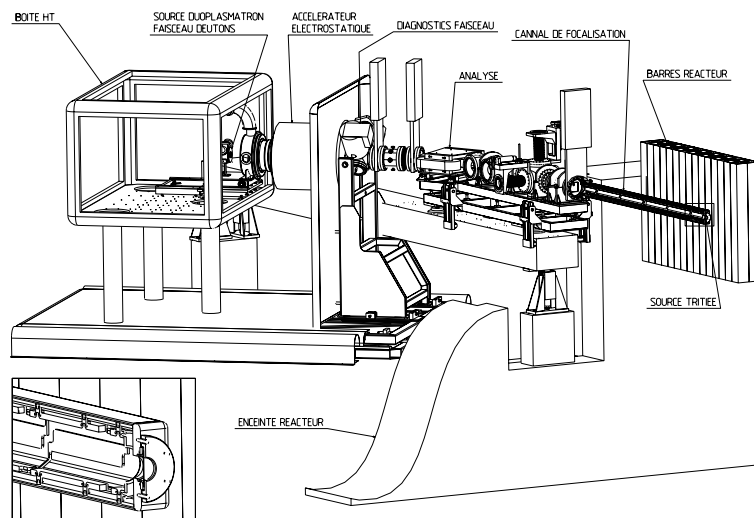


FIG. 2.2 – *Schéma d'ensemble du GENEPI.*

refocalisation et des diaphragmes à ce niveau limitent l’extension spatiale du faisceau. L’ensemble se termine par un tube guide d’ions (“doigt de gant”) transportant les deutons vers la cible, celui-ci est conçu pour un fonctionnement dans le cœur de MASURCA. La focalisation électrostatique interne très importante du “doigt de gant” permet de transporter le faisceau sur une distance de deux à trois mètres malgré la forte répulsion coulombienne entre les ions deutérés. La section finale du tube est contrainte par les spécificités géométriques du cœur de MASURCA, soit une section rectangulaire de $90 \times 115 \text{ mm}$. La focalisation évite les pertes d’ions et ainsi les implantations d’ions produisant par la suite des réactions $D(d,n)^3\text{He}$ parasites. Les matériaux utilisés pour la construction du générateur, principalement du doigt de gant, ont été étudiés pour être dépourvus de composants hydrogénés, qui comme nous le verrons dans la section 2.1.6, sont particulièrement susceptibles de dégrader nos mesures.

A l’extrémité du “doigt de gant” se trouve la cible, siège des réactions nucléaires produisant les neutrons. Deux types de réactions sont accessibles :

- la réaction $D(d,n)^3\text{He}$ produit des neutrons de 3,1 MeV (à 0°) pour des deutons d’environ 200 keV d’énergie cinétique,
- la réaction $T(d,n)^4\text{He}$ produit des neutrons de 15,1 MeV (à 0°) [27].

Les cibles sont fournies par la société Valduc filiale du CEA puis par la société SODERN : elles sont constituées d’un dépôt de titane sur lequel est adsorbé le tritium ou le deutérium, avec des rapports atomiques tritium/titane ou deutérium/titane compris entre 1,5 et 1,8. Le dépôt est fixé sur un support de Cuivre. L’activité moyenne de la cible de tritium utilisée pour nos expériences à Grenoble est inférieure à 1 Ci . Cette activité maximale de tritium nous est imposée par le statut même du laboratoire. Le dépôt de titane est de l’ordre de 200 à 250 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ pour une surface 5,1 cm^2 . Le support de Cuivre a 38 mm de diamètre et une épaisseur de 1 mm.

L’énergie des deutons se dégrade le long de leur trajectoire dans la cible. Comme la section efficace de réaction varie avec l’énergie des deutons incidents, le taux de production de neutrons varie en fonction de la profondeur où la réaction a lieu avec le tritium. La section efficace $T(d,n)\alpha$ est maximale pour des deutons d’énergie cinétique de 125 keV [27]. Compte tenu du ralentissement des deutons dans la cible, nous obtenons un maximum de rendement énergétique de neutrons pour des deutons d’énergie cinétique de 200 keV d’où la gamme d’énergie (0-250 keV) de l’accélérateur. Dans le cas d’une cible deutérée, pour une même énergie d’accélération, la production de neutrons est environ 20 fois plus faible, ce qui demande alors des temps de mesure bien plus longs qu’avec une cible de tritium.

Les principales caractéristiques de GENEPI sont regroupées dans le tableau 2.1. La détermination du nombre de neutrons produits par impulsion de deutons sur la cible sera exposée dans les sections 2.1.4 et 4.1.

2.1.2 La production de neutrons

Comme nous l’avons vu précédemment, les neutrons peuvent être produits selon deux voies. La première est la réaction $D(d,n)^3\text{He}$. Il faut rappeler que conjointement à cette réaction existe la réaction

Intensité crête	$\sim 50 \text{ mA}$
Taux de répétition	$50 \text{ Hz} < f < 5 \text{ kHz}$
Énergie cinétique du faisceau	250 keV
Largeur de l'impulsion	$0,7 \text{ } \mu\text{s} < \Delta T < 1 \text{ } \mu\text{s}$
$\langle E_n \rangle$ pour une cible de TiT	14 MeV
Diamètre du faisceau à mi-hauteur de l'intensité	$\sim 13 \text{ mm}$
Cible	tritium ou deutérium
Nombre de neutrons produits par impulsion	$1,7 \cdot 10^6$ pour 0,5 Ci de Tritium
Nombre de neutrons produits par seconde	$1,7 \cdot 10^9$ à $f=1000 \text{ Hz}$

TAB. 2.1 – *Caractéristiques du GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense.*

D(d,p)T, qui est quasiment équiprobable à la réaction d'émission de neutrons. Comme nous le verrons dans la section 2.1.4, cette réaction nous sera particulièrement utile pour étudier la pollution de la source par des implantations de deutérium dans la cible de tritium ou plus en amont dans l'accélérateur.

L'énergie libérée par la réaction D(d,p)T prend pour valeur 4.03 MeV, celle de D(d,n)³He 3.27 MeV. La section efficace totale de production de neutrons dans ce cas vaut environ 25 mb pour une vitesse d'accélération E_d de 125 keV et 35 mb pour $E_d=200$ keV. Pour une énergie moyenne des deutons de 125 keV, les neutrons émis vers l'avant ont une énergie de 2,9 MeV et la section efficace associée est de l'ordre de 3,11 mb/st ; ceux émis vers l'arrière ont une énergie de 2,11 MeV pour une section efficace de 2,25 mb/st. Nous observons la dépendance angulaire pour la réaction D(d,n)³He. L'énergie libérée par la réaction de T(d,n) α vaut 17.59 MeV et la section efficace totale 5 barns. Pour des deutons d'en moyenne 125 keV dans la cible au moment de la réaction, la section efficace différentielle vaut 375 mb/st à 0° et 336 mb/st à 180° . Dans le cas de cette réaction, nous observons que la production de neutrons est presque isotrope.

Dans le cas de notre expérience, la dépendance angulaire de l'énergie des neutrons émis est secondaire pour des neutrons d'énergie cinétique inférieure à 100 keV (cf. section 4.1.1). La description angulaire de la distribution énergétique des neutrons jouera un rôle important lorsque nous discuterons de la propagation des neutrons émis par la source dans le bloc de plomb (cf. section 4.1).

2.1.3 Le spectromètre à temps de ralentissement

a - Le bloc de plomb

Les dimensions et la forme du bloc de plomb (cf. fig. 2.3) mis en place à l'ISN pour cette expérience sont un compromis entre un gros volume de plomb permettant de se rapprocher le plus possible du spectromètre à temps de ralentissement *idéal* (c'est à dire infini) et le coût d'un tel investissement. Sa structure a du être également choisie afin de faciliter la manutention. Il est donc constitué de 8 sous-éléments cubiques de 80 cm de côté. Ces blocs sont pourvus à leur base de 2 canaux chacun de section carrée de 10 cm de côté. Ces canaux permettent tout d'abord une manipulation aisée, rapide et sûre

par une fourche de levage de chacun des éléments, mais laissent ainsi des espaces libres pour placer les détecteurs à l'intérieur du massif une fois l'assemblage fait. Quatre de ces blocs présentent une entaille le long d'une de leur arête supérieure pour permettre au "doigt de gant" de GENEPI de s'insérer dans le massif et placer ainsi la source de production de neutrons au centre du bloc de plomb. Les canaux utilisés pour placer les détecteurs dans le plan horizontal formé par l'axe du faisceau de deutons sont remplis au trois-quart de petites briques de plomb de même nature que les blocs principaux pour amener la section à $5 \times 5 \text{ cm}^2$. Les canaux non utilisés sont totalement remplis de briques de plomb de $20 \times 10 \times 5 \text{ cm}^3$ (cf. fig. 2.4). La masse totale de cet assemblage est de l'ordre de 46,5 tonnes. Le plomb a été fourni par la Société Européenne de Plomberie Industrielle (SEPI). Malgré sa très grande pureté (99.99% de plomb), certaines impuretés existent. Les noyaux les plus pénalisants du point de vue de la capture neutronique, et donc de la modification du milieu ralentisseur, sont regroupés dans le tableau 2.2.

Élément	Fraction (ppm)	Matériau	Fraction (ppm)
Argent	5.0	Arsenic	<1.0
Bismuth	15	Calcium	<10.0
Cadmium	<10.0	Cobalt	<10.0
Chrome	<5.0	Cuivre	<10.0
Fer	<1.0	Manganèse	<5.0
Nickel	<1.0	Soufre	<1.0
Antimoine	<1.0	Etain	<1.0
Tellurium	<5.0	Zinc	<1.0

TAB. 2.2 – *Impuretés dans le bloc de plomb de l'ISN: Noyaux concernés et proportions en ppm (parties par million).*

Nous remarquons que certains taux d'impuretés du plomb sont seulement donnés avec une limite supérieure. Nous étudierons les effets que peuvent entraîner certaines de ces impuretés lors de la mesure de la capture neutronique ainsi que sur le bruit de fond (cf. section 5.1.5). L'élément le plus pénalisant est sans doute l'argent, dont la section efficace de capture de l'isotope 109 présente une résonance à 5,2 eV de l'ordre de 12000 barns qui bien que présent à environ 5 ppm dans le plomb augmentera localement le bruit de fond et pourra provoquer une diminution du flux de neutrons à laquelle les détecteurs pourront être sensible. Il sera crucial de bien connaître les impuretés du plomb afin de décrire très précisément l'ensemble expérimental dans la simulation.

Le bloc de plomb est entouré de feuilles de cadmium de 0,5 mm d'épaisseur pour limiter le retour des neutrons ayant fui le massif (cf. fig. 2.3). En effet, des simulations ont montré que les neutrons s'échappant du bloc de plomb se thermalisent lors de chocs contre les murs en béton de l'aire expérimentale, et peuvent être diffusés à nouveau vers le bloc de plomb. La très grande résonance de capture du cadmium située à 0,2 eV permet de les absorber. Ces neutrons qui reviennent dans le massif de plomb ont un temps de ralentissement différent des neutrons restés dans le bloc de plomb,

ceux-ci viennent alors polluer la relation entre le temps de ralentissement du neutron et son énergie cinétique, d'où cette précaution. Il a été calculé que 85% des neutrons s'échappant du bloc de plomb et qui reviennent dans celui-ci pour contribuer au flux de neutrons à la position de la mesure sont en fait des neutrons qui sont passés par le socle qui supporte le massif dont une partie est constituée de plomb. Leur contribution croît avec le temps de ralentissement : négligeable à $t = 10 \mu s$, elle représente 10% du flux de neutrons à $200 \mu s$. A ces temps, l'énergie des neutrons est supérieure à l'énergie de la résonance de capture du cadmium. Il a été aussi remarqué que les neutrons passés par le socle de plomb et contribuant au flux de neutrons à la position de mesure avaient la même relation liant l'énergie au temps de ralentissement des neutrons. Ces neutrons ne sont donc pas pénalisants.

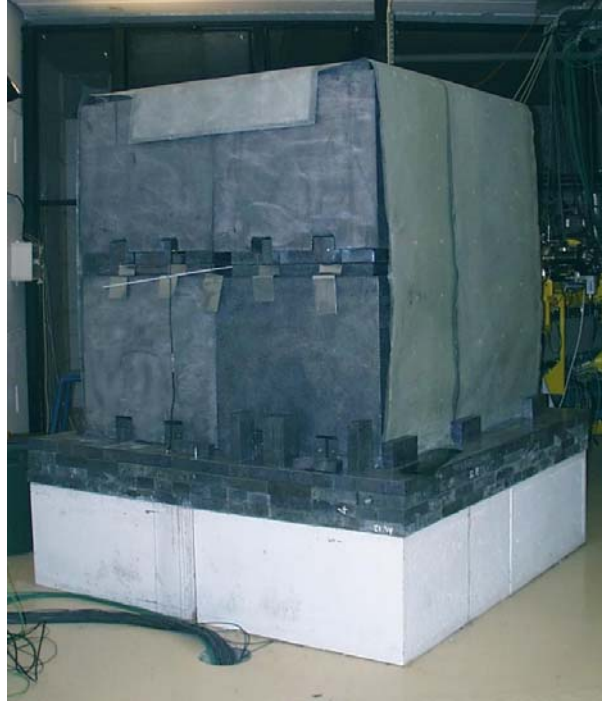


FIG. 2.3 – Photo du bloc de plomb sur son socle : vue de la face où les détecteurs sont insérés, l'accélérateur GENEPI est en arrière plan.

b - Physique du spectromètre à temps de ralentissement

Caractéristiques fondamentales

La diffusion élastique d'un neutron d'énergie cinétique inférieure à quelques MeV sur un noyau de masse A est décrite par la mécanique classique. Nous considérons le cas de deux sphères indéformables. Par la conservation des vitesses et de l'énergie dans le repère du laboratoire, nous pouvons en déduire l'énergie cinétique E' du neutron après le choc en fonction de son l'énergie E_0 avant le choc, de la masse du noyau A sur lequel la diffusion a lieu, et de l'angle φ que forme le noyau de recul avec la

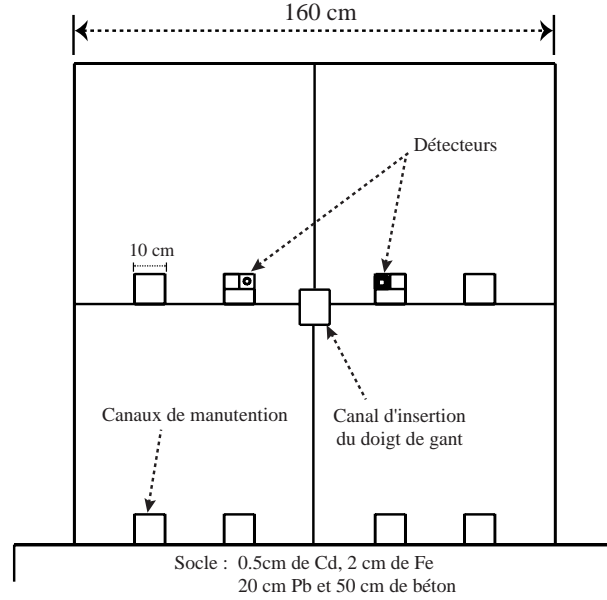


FIG. 2.4 – Coupe verticale du bloc de plomb.

direction du neutron incident dans le repère du laboratoire. Cette expression prend la forme suivante :

$$E' = \left(1 - \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2 \varphi \right) E_0 . \quad (2.1)$$

Nous pouvons en déduire l'énergie cinétique moyenne \bar{E}' du neutron après le choc ainsi que la perte moyenne $\overline{\Delta E}$ d'énergie associée en considérant que la diffusion des neutrons est isotrope. En posant $\alpha = \frac{(A-1)^2}{(A+1)^2}$, ces deux quantités s'expriment de la façon suivante :

$$\bar{E}' = \frac{E_0}{2} (1 + \alpha) \quad \text{et} \quad \overline{\Delta E} = \frac{E_0}{2} (1 - \alpha) . \quad (2.2)$$

Nous pouvons observer que la perte moyenne d'énergie cinétique du neutron peut varier dans de grandes proportions suivant la masse du noyau diffuseur. Dans le cas d'un noyau d'hydrogène, le neutron perd en moyenne la moitié de son énergie. A la différence d'un noyau lourd comme le plomb où $\langle A \rangle = 207,2 \text{ g.mol}^{-1}$, la perte moyenne relative d'énergie ($\overline{\Delta E}/E_0$) vaut alors $9,56 \cdot 10^{-3}$ soit environ 1%.

L'énergie moyenne du neutron après n chocs élastiques s'écrit :

$$\bar{E}'_n = E_0 \left(\frac{1 + \alpha}{2} \right)^n . \quad (2.3)$$

Une grandeur utilisée également pour exprimer le ralentissement des neutrons par diffusion élastique est la léthargie définie par $u = \ln \frac{E_0}{E}$ [28, 29, 2, 30]. On exprime alors l'augmentation de léthargie $\overline{\Delta u}$ par le paramètre de ralentissement ξ . Ce paramètre ne dépend que du nombre de masse A du milieu ralentisseur et s'exprime sous la forme :

$$\xi = \overline{\Delta u} = 1 + \frac{\alpha}{1 - \alpha} \ln \alpha . \quad (2.4)$$

Dans le cas du plomb, nous pouvons observer que : $\xi = 9,62 \cdot 10^{-3} \simeq \frac{\overline{\Delta E}}{E_0}$. Le paramètre de ralentissement ξ représente bien la même quantité que la perte moyenne d'énergie relative $\frac{\overline{\Delta E}}{E_0}$ du neutron entre deux chocs.

Le nombre de chocs nécessaires au neutron pour passer de l'énergie E_0 à l'énergie E peut alors être déterminé. Cette quantité est la somme de l'augmentation moyenne de l'éthargie $\overline{\Delta u}$. De l'équation (2.3), nous pouvons déduire de la même façon le nombre de chocs n qu'effectue le neutron entre E_0 et E :

$$n = \frac{1}{\xi} \ln \frac{E_0}{E} \simeq \frac{1}{\ln \frac{2}{1+\alpha}} \ln \frac{E_0}{E} . \quad (2.5)$$

Si nous appliquons (2.5) au cas du plomb, le nombre de chocs élastiques nécessaires pour faire passer un neutron de l'énergie $E_0 = 600 \text{ keV}$ à 1 eV est environ 1380 collisions. Il apparaît que si un ralentissement lent des neutrons est souhaité, un milieu peu absorbant et de nombre de masse élevé doit être retenu.

Propriétés des matériaux

Une des propriétés fondamentales en physique nucléaire et particulièrement dans l'étude des réacteurs est la section efficace dont l'unité est le barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$). Celle-ci décrit les probabilités d'interaction entre le neutron et le noyau considéré. Suivant le noyau considéré et l'énergie du neutron, certains processus seront plus probables que d'autres. Compte tenu des énergies concernées par notre expérience ($E_n < 14 \text{ MeV}$), les sections efficaces qui vont intervenir seront $\sigma_{(n, \text{élas})}(E)$, $\sigma_{(n, \gamma)}(E)$, $\sigma_{(n, n')}(E)$, $\sigma_{(n, 2n)}(E)$, $\sigma_{(n, p)}(E)$, $\sigma_{(n, np)}(E)$ et bien évidemment la section efficace totale telle que $\sigma_{(n, \text{tot})}(E) = \sum_i \sigma_i(E)$. La figure 2.5 illustre, dans le cas du plomb, les différentes réactions auxquelles le neutron est sensible dans notre gamme d'énergie.

Les sections efficaces neutroniques sont reliées aux propriétés atomiques du milieu considéré par l'expression de la section efficace macroscopique $\Sigma(E) = n \cdot \sigma(E)$ ayant pour dimension le cm^{-1} où n est le nombre d'atomes par unité de volume [31, 32]. Nous pouvons alors définir le libre parcours moyen comme étant la distance moyenne que peut parcourir le neutron d'énergie E entre deux interactions dans un milieu de densité atomique n et de section efficace totale associée $\sigma_{\text{tot}}(E)$, cette quantité s'exprime sous la forme :

$$\lambda(\text{cm}) = \frac{1}{\Sigma_{\text{tot}}(E)} = \frac{1}{n \cdot \sigma_{\text{tot}}(E)} \quad (2.6)$$

Dans le cas du plomb, nous pouvons déterminer alors l'ordre de grandeur du libre parcours moyen. La densité d_{Pb} du plomb est de $11,34 \text{ g.cm}^{-3}$. En-dessous de 600 keV, la section efficace totale du plomb est entièrement dominée par la diffusion élastique, celle-ci a pour valeur moyenne dans cette région d'énergie $\sigma = 11.1 \text{ b}$ (cf. fig. 2.5). Le libre parcours moyen associé prend pour valeur $\lambda_{(n, \text{tot})} = 2,73 \text{ cm}$.

Nous pouvons maintenant déterminer l'ordre de grandeur de la distance parcourue par un neutron dans un massif de plomb pour passer de l'énergie $E_0 = 600 \text{ keV}$ à 1 eV. Cette distance peut s'exprimer comme le produit du nombre de chocs (cf. § 2.1.3) et du libre parcours moyen dans le plomb :

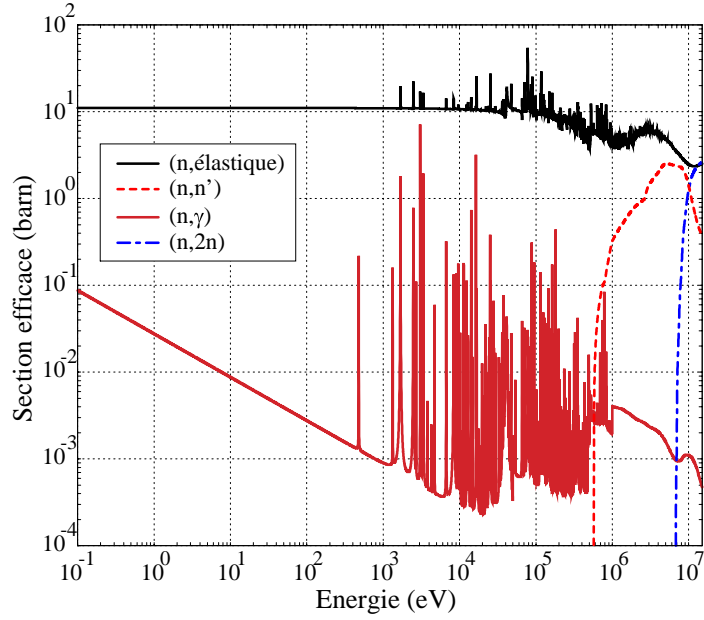


FIG. 2.5 – Sections efficaces de diffusion élastique, inélastique, de capture neutronique et $(n,2n)$ du plomb extraites de la base de donnée JENDL3.2.

$d_{tot} = \lambda \times n = 3780 \text{ cm}$. Cette distance parcourue n'est pas à confondre avec la longueur associée au temps de vol dont nous allons discuter ci-après (cf. § 2.1.3). Le choix de l'énergie $E_n = 600 \text{ keV}$ correspond à peu près au seuil de la section efficace de diffusion inélastique du neutron dans le plomb (cf. fig. 2.5). En effet, si $E_n > 600 \text{ keV}$, la perte d'énergie du neutron est beaucoup plus importante du fait de l'existence des réactions (n,n') et $(n,2n)$, le nombre de réactions associées pour passer de l'énergie initiale de la source ($E_0 = 14 \text{ MeV}$) à 600 keV est alors faible (cf. section 4.2).

Spectromètre à temps de ralentissement au plomb

En 1944, E.L. Feinberg lors d'un séminaire à l'académie des sciences Russe a exposé qu'en se ralentissant sous l'effet des chocs élastiques dans un milieu de nombre de masse A très grand, les neutrons se groupent suivant une gamme de vitesse peu étendue [33]. La vitesse du neutron diminue à mesure que le temps de ralentissement augmente. Dans le paragraphe 2.1.3 précédent, nous avons vu le traitement des chocs élastiques sur le noyau de masse A . De l'équation 2.2, nous pouvons déduire l'énergie du neutron après i chocs en fonction de son énergie initiale. Il est ainsi possible de définir la vitesse moyenne v_i du neutron au $i^{\text{ième}}$ choc, en posant $\beta = \frac{A}{(1+A)^2}$:

$$E_i = E_0 (1 - 2\beta)^i \quad \text{et} \quad v_i = v_0 (1 - 2\beta)^{i/2} . \quad (2.7)$$

Le temps moyen entre le $(i-1)^{\text{ième}}$ et le $i^{\text{ième}}$ choc s'exprime par $\langle t_i \rangle = \frac{\lambda_{(n,\text{élas})}(E)}{v_i}$, tel que $\lambda_{(n,\text{élas})}$ représente la distance moyenne que parcourt le neutron entre deux diffusions. Le temps moyen total

mis par le neutron pour passer de sa vitesse initiale à la vitesse au n^{ième} choc s'écrit :

$$\langle t_n \rangle = \sum_{i=0}^{n-1} \langle t_i \rangle = \sum_{i=0}^{n-1} \frac{\lambda_{(n,elas)}(E)}{v_0} \frac{1}{(1-2\beta)^{i/2}}. \quad (2.8)$$

Si on considère que la section efficace de diffusion élastique est constante au premier ordre pour le plomb (cf. fig. 2.5) entre 0.1 eV < E_n < 100 keV, le libre parcours moyen associé $\lambda_{(n,elas)}$ est supposé constant. Nous pouvons alors réécrire l'équation 2.8 sous la forme :

$$\langle t_n \rangle = \frac{\lambda_{(n,elas)}}{(1-2\beta)^{-1/2} - 1} \left(\frac{1}{v_n} - \frac{1}{v_0} \right). \quad (2.9)$$

Dans le cas de neutrons effectuant des chocs élastiques sur des noyaux de plomb, la masse A du plomb étant très supérieure à celle du neutron, nous pouvons alors faire l'approximation $\beta \sim \frac{1}{A}$ et $\langle t_n \rangle = A \lambda_{(n,elas)} \left(\frac{1}{v_n} - \frac{1}{v_0} \right)$. Si $v_0 \gg v_n$, nous pouvons alors constater que le temps de ralentissement jusqu'à la vitesse v_n est égal au temps de vol du neutron parcourant à cette vitesse la distance équivalente $L = A \lambda_{(n,elas)} \simeq 5.65m$. Quand du plomb est utilisé comme ralentisseur, le parcours effectif est donc bien caractéristique d'une dimension utilisable dans les méthodes de mesure de section efficace par temps de vol. Cette longueur de temps de vol est nettement plus faible que celle de l'installation n-TOF au CERN (200 m) [13] ou celle de l'accélérateur linéaire d'électrons de Geel en Belgique [12].

L'énergie cinétique moyenne E du neutron, en fonction du temps de ralentissement t_n peut maintenant être obtenue. Dans l'équation (2.9), la vitesse moyenne v_n au n^{ième} choc est remplacée par $v_n = \sqrt{\frac{2E}{M_n}}$ et la vitesse initiale v_0 du neutron est remplacée par $v_0 = \sqrt{\frac{2E_0}{M_n}}$. La relation (2.9) peut donc être reformulée et prendre la forme proposée par R.E Slovacek et al. [34] :

$$E = \frac{K}{(t + t_0)^2} \quad (2.10)$$

Avec les paramètres caractéristiques K et t_0 du transport des neutrons dans le milieu ralentisseur :

$$K = \frac{M_n \lambda_{(n,elas)}^2}{2 \left((1-2\beta)^{-1/2} - 1 \right)^2} \simeq \frac{M_n \lambda_{(n,elas)}^2 (1-\beta)^2}{2\beta^2} \quad (2.11)$$

$$t_0 = \frac{\lambda_{(n,elas)}}{\sqrt{\frac{2E_0}{M_n}} \left((1-2\beta)^{1/2} - 1 \right)} \simeq \frac{\lambda_{(n,elas)} (1-\beta)}{\beta} \sqrt{\frac{M_n}{2E_0}} \quad (2.12)$$

Dans le cas d'un milieu diffuseur tel que le plomb, $A = 207,2 \text{ g.mol}^{-1}$ et $\lambda_{(n,elas)} \simeq \lambda_{(tot)}$, la valeur de K théorique est $166400 \text{ eV} \cdot \mu s^2$, et $t_0 = 0,11 \mu s$ pour des neutrons dont l'énergie initiale est de 14 MeV. Le paramètre t_0 traduit le fait que l'énergie initiale des neutrons n'est pas infinie et qu'il faut un certain temps pour que les neutrons d'énergie E_0 aient rejoint la relation énergie-temps. Il faut rappeler maintenant que les premiers processus physiques auxquels le neutron est confronté à haute énergie ne sont pas purement élastiques. La section efficace élastique ne domine qu'au-dessous de 600 keV, qui correspond au seuil en énergie de la section efficace de diffusion inélastique. Il est alors

possible de considérer cette énergie comme la “vraie” source de neutrons où ceux-ci ne subiront plus que des diffusions élastiques : la nouvelle valeur de t_0 associée est alors $0,53 \mu s$. Une image équivalente de la signification de t_0 est de considérer que ce paramètre est le temps nécessaire au neutron pour passer de l’énergie initiale avec laquelle il est émis jusqu’au seuil des diffusions inélastiques.

En résumé, nous pouvons observer que pour un temps de ralentissement court, l’énergie cinétique tend bien vers la valeur de l’énergie initiale. Et pour des temps très grands, la contribution de t_0 devient négligeable, le neutron a alors perdu la mémoire des conditions dans lesquelles il a été créé.

Enfin, une des caractéristiques d’un spectromètre à temps de ralentissement au plomb est son pouvoir de résolution. Celui-ci décrit la dispersion Δv des vitesses des neutrons autour de la valeur moyenne \bar{v} à un instant donné. Si $\bar{v} \ll v_0$ et que $\lambda_{(n,elas)}$ est constant, la dispersion des vitesses prend la forme suivante, où k est la constante de Boltzmann et T la température exprimée en Kelvin [33] :

$$D = \frac{\overline{\Delta v^2}}{v^2} = \frac{2}{3A} + \frac{kT}{4E} . \quad (2.13)$$

Le premier terme du second membre ($\frac{2}{3A}$) de la relation (2.13) exprime principalement la dispersion statistique du libre parcours moyen de diffusion élastique du neutron dans le plomb. Le terme $\frac{kT}{4E}$ représente la dispersion complémentaire des pertes d’énergie dans la diffusion sous l’effet du mouvement thermique des atomes du ralentisseur ; ce terme ne pourra être négligé au-dessous de 5 eV.

Dans du plomb à la température $T = 293$ K, cette dispersion des vitesses (cf. eq. 2.13) peut se traduire de la même façon par une dispersion en énergie des neutrons autour de l’énergie moyenne :

$$\frac{\Delta E}{E} = \sqrt{\frac{8}{3A}} \sqrt{1 + \frac{3AkT}{8E}} . = 0.1134 \sqrt{1 + \frac{1.96}{E}} \quad (2.14)$$

Nous observons clairement que la résolution en énergie est toujours supérieure à environ 11 % quelle que soit l’énergie du neutron.

2.1.4 Dispositif pour le monitoring de la source de neutrons

La mesure du courant

La mesure de l’intensité du faisceau d’ions sur la cible est effectuée pour différentes raisons. Elle permet tout d’abord de connaître à chaque instant le courant moyen de deutons sur la cible. De plus, la mesure de l’intégrale de la quantité de charges qui frappent la cible pendant les différentes expériences permet de déterminer l’évolution de la cible et son éventuelle usure en fonction du temps. La mesure du courant donne aussi la forme de l’impulsion temporelle de deutons.

Cette mesure s’effectue sur le support de cuivre de la cible tritiée ou deutérée (cf. § 2.1.1). La cible repose en effet sur un joint isolant et est tenue par deux bagues d’isolation électrique. Ceci permet la mesure du courant d’ions D^+ et l’intégration de la charge électrique totale. La cible ne constitue pas une véritable cage de Faraday et elle n’est pas polarisée.

Monitoring relatif

Dans un réacteur nucléaire tel que MASURCA à Cadarache, les neutrons présents dans le cœur sont issus de diverses origines. Il y a d'une part les neutrons issus directement de la source de GENEPI, et d'autre part, les neutrons de la source intrinsèque que représente le combustible uranium-plutonium (réactions (α, n) , fissions spontanées ...), auxquels s'ajoutent les neutrons produits par les fissions des noyaux du combustible. La distribution en énergie de ces neutrons s'étale entre quelques meV et quelques MeV. De la même façon, dans l'expérience où le GENEPI est couplé au spectromètre à temps de ralentissement au plomb, il est important d'effectuer le monitoring du faisceau.

Comme il a été vu dans la section 2.1.2, les particules chargées produites dans les réactions nucléaires avec les deutons incidents sur le deutérium ou le tritium de la cible sont respectivement des ^3He et des α . Nous avons vu également que la réaction avec le deutérium produit avec un rapport de branchement de l'ordre de 50% des protons et des tritons. Une possibilité de monitoring de ces réactions est alors de détecter ces particules chargées induites par les réactions de production de neutrons.

Pour détecter ces particules, il faut se placer en regard de la cible de TiT, le seul lieu accessible à cette mesure est le conduit du faisceau. Ces particules étant chargées, celles émises à 180° par rapport aux deutons incidents peuvent remonter la ligne de guidage et se trouvent focalisées par l'ensemble des quadrupôles placés en sortie de la chambre d'aimant, d'où un faible angle solide de sortie de cible pris en compte [26]. Dans l'aimant spectromètre, l'effet du champ magnétique (de l'ordre de 0,2 Tesla) défléchit ces particules d'un angle qui leur permettra d'atteindre l'arrière de la chambre et d'y être détectées (cf. tab. 2.3).

Particule	D ⁺	D ₂ ⁺	α	p	t	^3He
Energie cinétique (MeV)	0.220	0.22	2.63	2.46	0.51	0.40
Rayon de courbure (mètres)	0.479	0.677	1.168	1.132	0.893	0.395
Angle de rotation (degré)	45		20	20		

TAB. 2.3 – *Caractéristiques du dipôle de GENEPI: rayon de courbure associé aux particules chargées ainsi que leur angle de rotation pour l'énergie de deutons $E_d \simeq 220 \text{ keV}$ et $B \simeq 0.2 \text{ Tesla}$.*

Compte tenu de la géométrie du système (cf. fig. 2.6) et de la position du détecteur à l'arrière de la chambre à vide de l'aimant, seuls les α (réaction T(d,n) α) et les protons (réaction D(d,p)T) pourront être détectés au même endroit. A cette position, dans le vide, plus précisément à l'endroit où le flux de particules α et p est maximal dans le plan horizontal, une boîte métallique creuse de $60 \times 70 \times 45 \text{ mm}^3$ est placée. Les parois de cette boîte ont une épaisseur de 5 mm pour protéger la mesure du bruit de fond γ existant dans la chambre de l'aimant suite à des interactions entre les deutons et les parois de la chambre à vide. Cette boîte est percée de deux trous de 8 mm de diamètre dans le plan horizontal pour permettre aux α et aux protons de passer. L'un de ces deux collimateurs est masqué par une feuille d'aluminium de $10 \mu\text{m}$ pour stopper les α tout en laissant passer les protons. Derrière les collimateurs, deux détecteurs silicium carrés de 1 cm de côté sont fixés.

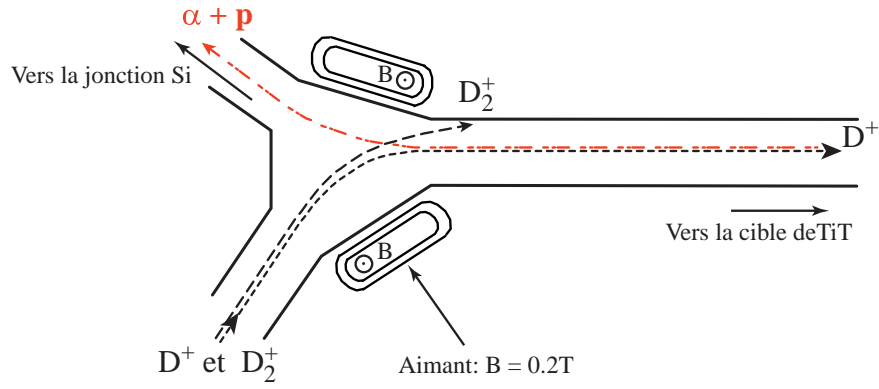


FIG. 2.6 – Schéma de principe du système de détection des particules α et p émises par la source de production de neutrons de GENEPI.

La détection des α et des protons sur un même détecteur donne une image de la source totale de production de neutrons de GENEPI (réactions $T(d,n)\alpha$ et $D(d,n)^3\text{He}$). La jonction détectant uniquement les protons donne celle relative de la source $D(d,p)T$ résultant des deutons qui s'implantent dans la cible de TiT au cours de l'irradiation. Ces détecteurs vont également nous donner la forme temporelle de l'impulsion de neutrons. Les différents temps de vol permettront de déduire les lieux où les deutons s'implantent le long du tube de GENEPI (cf. section 3).

Monitoring absolu

La méthode de mesure adoptée pour déterminer le flux de neutrons émis par la cible de TiT de GENEPI est basée sur les réactions à seuil de noyaux dont les sections efficaces sont connues. L'isotope 58 du Nickel (68% dans le nickel naturel) est un bon candidat pour ce type de mesure. Dans un flux de neutrons d'énergie de l'ordre de 14 MeV, les sections efficaces $(n,2n)$, (n,np) et (n,p) sont accessibles (cf. fig 2.7). Dans le tableau 2.4, les données physiques utiles pour cette expérience ont été regroupées.

Réaction	Seuil en énergie (MeV)	Noyaux formés	demi-vie $T_{1/2}$
$(n,2n)$	12	^{57}Ni	35.6 heures
(n,np)	10	^{57}Co	271.74 jours
(n,p)	1	^{58}Co	70.86 jours

TAB. 2.4 – Réactions concernées par les irradiations de l'isotope 58 des cibles de nickel.

Des pastilles de nickel naturel de diamètre 15 mm et 20 mm, d'épaisseur 0.2 mm sont placées soit directement sur l'extrémité du doigt de gant, soit distribuées en divers points du bloc de plomb. Elles sont ensuite irradiées par les neutrons émis par la cible de TiT qui se propagent dans le bloc de plomb. Après l'arrêt du faisceau, ces cibles sont placées successivement devant un compteur Germanium au laboratoire de basses activités de l'ISN [35]. Ce laboratoire est spécialement dédié aux mesures

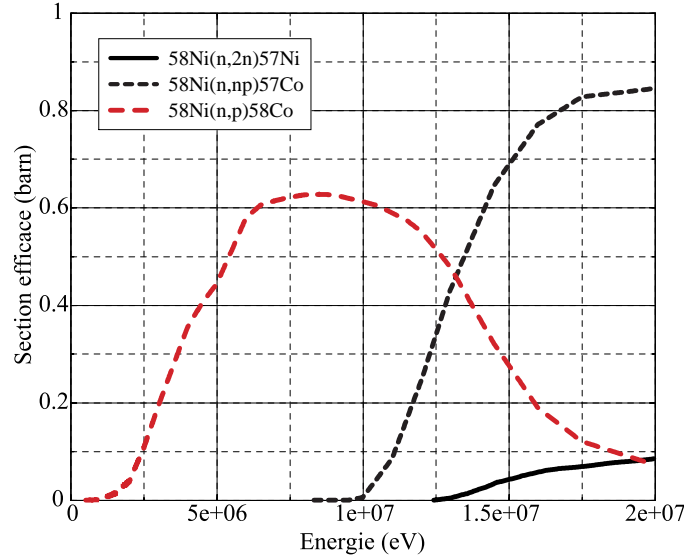


FIG. 2.7 – Sections efficaces (n,np) , $(n,2n)$ et (n,p) du ^{58}Ni tabulées dans la base de données ENDF/B-VI.

d'échantillons de très faibles activités γ , le bruit de fond associé est en effet réduit à 0.056 Hz pour des γ d'énergies comprises entre 30 keV et 3 MeV. L'activité au moment de l'arrêt de l'irradiation est déterminée pour chacun des noyaux dont les γ de désexcitation ont été mesurés ($^{57}_{28}\text{Ni}$, $^{57}_{27}\text{Co}$ et $^{58}_{27}\text{Co}$).

Cette mesure nous donne deux informations :

- le nombre de neutrons émis en moyenne à chaque impulsion de la machine. Cette valeur est dépendante des conditions de faisceau adoptées pendant l'expérience ainsi que de l'état de la cible de TiT au moment de la mesure.
- la distribution du flux de neutrons de hautes énergies ($E > 1$ MeV) dans le plomb et son atténuation en fonction de l'épaisseur de plomb traversée.

La connaissance du nombre de neutrons source émis dans d'autres conditions sera possible grâce à la présence, à chaque expérience, d'autres moniteurs neutron dans le bloc de plomb à une position fixe: le détecteur (α p) pour le monitoring relatif et le détecteur à gaz hélium 3.

2.1.5 Détecteurs pour la détermination du flux de neutrons

Le détecteur de fissions

Pour la mesure du flux en énergie des neutrons, nous avons utilisé la technique qui avait été élaborée lors de l'expérience TARC en 1996 [29], c'est à dire la mesure du taux de fission d'un élément fissile de section efficace connue. L'échantillon utilisé est un oxyde d'uranium 233 de $200 \mu\text{g.cm}^{-2}$ déposé sur une fine feuille d'aluminium fixée sur un support en Inox de 0.5 mm d'épaisseur. L'ensemble est monté dans un étui de plomb de faibles dimensions: $(37 \times 20 \times 12 \text{ mm}^3)$. En regard de la cible d' ^{233}U , à l'intérieur de la boîte de plomb, est montée une jonction silicium de 1 cm^2 et de $300 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Entre la cible et la jonction est placé un collimateur en inox (cf. fig. 2.8) [36]. Cet étui

de plomb est fixé dans une petite chambre en Inox afin d'y faire un vide primaire à l'intérieur pour le bon fonctionnement du détecteur. L'ensemble est monté sur une canne de trois mètres de long pour permettre l'insertion du détecteur dans les canaux du massif de plomb. Les dimensions et les matériaux utilisés pour ce détecteur ont été étudiés pour minimiser la quantité de matière afin de perturber le moins possible la relation entre le temps de ralentissement du neutron et son énergie cinétique. Les matériaux hydrogénés ont été supprimés dans le circuit imprimé supportant la jonction. Les matériaux du détecteur présentent des sections efficaces de capture faibles (Al, inox, Pb, téflon). Le schéma montre la présence d'une cible de fluorure de lithium. Les α et les tritons émis lors de la réaction des neutrons sur le lithium peuvent aussi être détectés par la jonction silicium. La section efficace de la réaction $n(^6\text{Li},\alpha)t$ étant très bien connue, nous pouvons donc déterminer aussi le flux en énergie des neutrons. Mais les résultats obtenus ne sont pas présentés ici en raison de la trop faible statistique obtenue lors de l'expérience.

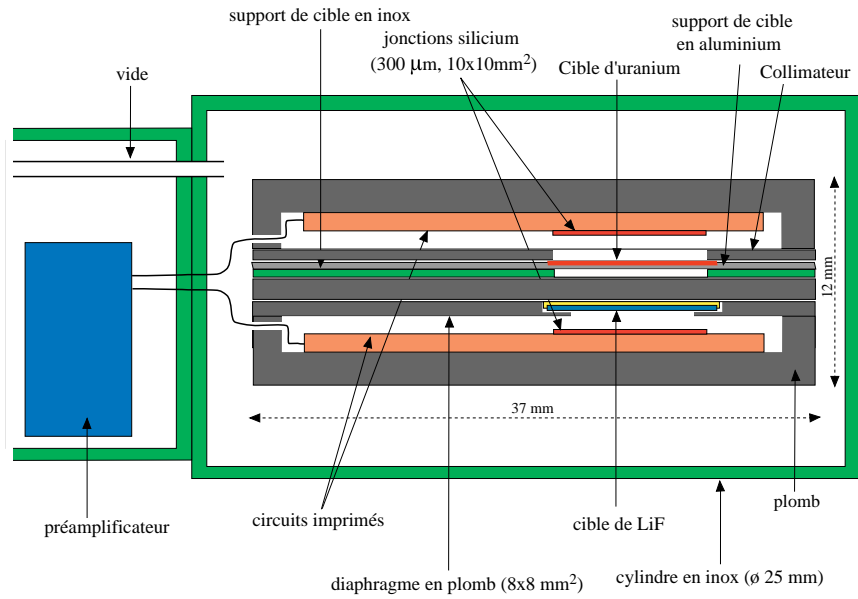


FIG. 2.8 – Schéma de principe du détecteur silicium utilisant la cible d' ^{233}U . Le dessin n'est pas à l'échelle (la partie inférieure du détecteur ne sert pas ici).

L'avantage de l'utilisation d'une telle cible active est la possibilité d'auto-calibration du détecteur. En effet, l'isotope ^{233}U est un émetteur α (4,8 MeV) de demi-vie $1.592 \cdot 10^5$ ans. Le produit du nombre d'atomes de la cible par l'angle solide de mesure est donc directement obtenu par le rapport du nombre d' α de désintégration spontanée détectés sur le nombre d' α de désintégration calculés à partir de la masse de la cible (cf. § 4.1.1). Sous le flux de neutrons du bloc de plomb, l' ^{233}U fissionne suivant la réaction type suivante :



Lors de la fission, les neutrons émis et les deux produits de fission emportent environ 170 MeV d'énergie ; le reste est partagé par les photons, les électrons et les antineutrinos. La jonction silicium

doit détecter les α de désintégration et les produits de fission. Pour utiliser l'auto-calibration du détecteur grâce à la détection des α , il faut détecter les produits de fission dans les mêmes conditions géométriques que les α . Il faut donc qu'un produit de fission puisse sortir de la cible d' ^{233}U avec les mêmes chances qu'un α . Compte tenu que la densité de l'uranium est 18.95 g/cm^{-3} , l'épaisseur équivalente du dépôt d' ^{233}U est environ $0.1 \mu\text{m}$. Il est possible d'estimer les pertes d'énergie et les parcours associés des α et de produits de fissions typiques dans l'uranium. De la même façon, il est possible de déterminer le parcours de ces mêmes particules dans le silicium et de le comparer à l'épaisseur de la jonction qui est de $300\mu\text{m}$ (cf. tab. 2.5).

Particule	Energie initiale (MeV)	Uranium		Silicium
		Parcours (μm)	Perte d'énergie (MeV)	Parcours (μm)
α	4.8	8	0.04	22.5
$_{54}\text{Xe}$	72	3.5	2.4	8.5
$_{38}\text{Sr}$	100	6.5	2.6	14.5

TAB. 2.5 – *Parcours et pertes d'énergie des α et de deux produits de fission dans l'uranium et le silicium [37, 38]*

Ces particules ont suffisamment d'énergie pour sortir de la cible d'uranium. Les parcours des produits de fission et des α étant suffisamment grands par rapport à l'épaisseur de la cible, leur détection s'effectue donc bien de la même manière. Les pertes d'énergie dans l'uranium sont relativement faibles et peu pénalisantes sur la résolution des distributions en masse des produits de fission. Les particules s'arrêtant complètement dans le silicium, les α et les produits de fission sont parfaitement résolus.

Détecteurs ^3He

Pour effectuer des mesures dynamiques dans le réacteur MASURCA lors des expériences MUSE, l'ISN a développé une série de compteurs proportionnels à gaz hélium 3. La spécificité de ces compteurs est leur encombrement réduit : les dimensions étant contraintes par la taille des canaux de mesure du réacteur de recherche. Dans le cadre des expériences ayant pour objectif de valider des sections efficaces de capture neutronique sur divers échantillons, la mesure obtenue avec ce détecteur nous permet d'effectuer le monitoring des neutrons dans le massif de plomb pour chaque expérience de taux de réaction de capture avec le photomultiplicateur. Ce détecteur est aussi employé pour étudier la distribution du flux de neutrons en fonction du temps ou de l'énergie à une position donnée dans le massif de plomb.

La réaction à la base de la détection est la capture d'un neutron par un noyau d'hélium 3, ce qui engendre l'émission de deux particules chargées, un triton et un proton. Les deux produits de la réaction emportent la somme de l'énergie incidente du neutron capturé et de l'énergie de la réaction ici égale à 764 keV :

$$n + {}^3\text{He} \longrightarrow p + t + 764 \text{ keV} \quad (2.16)$$

La mesure de l'énergie des neutrons est donc possible par la collection totale de l'énergie de ces deux particules. Dans un cas idéal le proton et le triton laissent toute leur énergie dans le gaz stoppeur (ici de l'argon) du compteur essentiellement par collisions inélastiques avec les atomes du gaz. Les particules produites par ces ionisations sont accélérées par un champ électrique appliqué entre le fil axial et la paroi du compteur, produisant à nouveau d'autres ionisations et ainsi de suite ce qui amplifie la charge finalement collectée sur le fil. La variation de tension engendrée par cette charge fournit donc un signal proportionnel à l'énergie déposée dans le compteur [39, 40, 36].

Le compteur est décrit sur la figure 2.9. La zone “utile” correspond à un cylindre de rayon 1 cm et de longueur 6 cm. Une tension électrique de l'ordre de 1200 V est appliquée sur le fil d'inox de 25 μm de diamètre. La composition du remplissage utilisé dans la plupart de nos expériences menées à l'ISN était la suivante: 70 mbars d'hélium 3 (cible de la réaction nucléaire), 3.3 bars d'argon (matériau d'arrêt des particules chargées) et 2.5 mbars de dioxyde de carbone (gaz quencheur) [41].

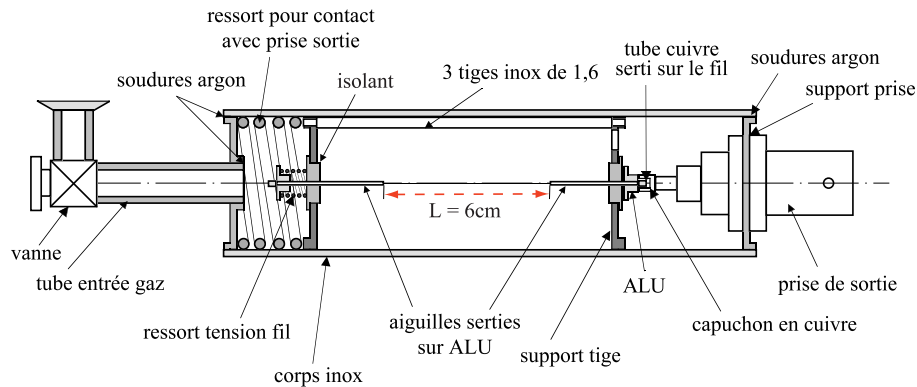


FIG. 2.9 – Schéma du compteur proportionnel à hélium 3.

La section efficace (n,p) de l'hélium 3 varie avec la vitesse des neutrons comme $1/v$. Le compteur est donc plus efficace pour des neutrons très lents que pour des neutrons rapides. D'autre part, le compteur étant de dimensions finies, cela implique qu'un certain nombre de protons et tritons heurteront la paroi du détecteur avant d'avoir cédé toute leur énergie au gaz. Cet effet de bord conduit pour une énergie donnée à un étalement du spectre vers les basses énergies ce qui rend plus difficile son interprétation (cf. section 4.3.2).

Ces détecteurs sont fixés à l'extrémité d'une canne pour permettre leur insertion dans les canaux du bloc de plomb. Le compteur est alors placé dans le bloc à une position fixe symétrique à celle du photomultiplicateur (cf. section 2.1.6) par rapport à l'axe du faisceau de GENEPI dans le cas où le compteur est utilisé pour le monitoring des neutrons. Pour les mesures de variation du flux de neutrons en fonction du temps, un deuxième compteur est utilisé à la place du photomultiplicateur. Nous pouvons faire remarquer qu'une bonne résolution en énergie du compteur ainsi qu'une analyse détaillée des spectres en énergie qu'il fournit ne sont pas forcément requises pour l'expérience puisque seul le spectre en temps est exploité ici.

2.1.6 Détection des captures neutroniques

Lorsqu'un neutron est capturé par un noyau, il s'ensuit une émission de plusieurs γ prompts avec des temps de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-14} s. La détection de ces γ avec un système composé d'un scintillateur et d'un photomultiplicateur permet d'estimer le nombre de réactions de capture (*n,gamma*) en fonction du temps de ralentissement des neutrons.

Le scintillateur utilisé est de même nature que celui employé lors de l'expérience TARC par le groupe de Grenoble [2, 29]. Il s'agit d'un cristal de CeF_3 qui a deux constantes de temps de décroissance très courtes (5 et 30 ns) [42]. Ces constantes de décroissance sont largement supérieures au temps d'émission des γ émis lors d'une capture neutronique. Elles restent cependant inférieures ou de l'ordre de grandeur du temps de l'échantillonnage de notre système d'acquisition (cf. section. 2.1.7). Il faut noter aussi que la section efficace de capture de ce scintillateur est relativement faible, ce qui minimisera le bruit de fond γ détecté. Le spectre d'émission de ce matériau se situant dans l'ultra-violet, le photomultiplicateur est choisi en conséquence. Notre choix s'est porté sur un photomultiplicateur rapide XP-1911 dont la photo-cathode fonctionne dans l'ultra-violet [43]. Ce choix repose aussi sur son faible encombrement (diamètre 19 mm) qui contribue à une réduction du bruit de fond expérimental.

Le scintillateur d'une épaisseur de 3 mm est monté sur la fenêtre du photomultiplicateur à l'aide d'une graisse optique. Une feuille d'aluminium est appliquée sur le scintillateur pour réfléchir la lumière de scintillation. Le corps du photomultiplicateur est entouré d'un premier adhésif en Téflon pour l'isolation électrique. Un adhésif spécial en tissu de verre, minimisant les matières hydrogénées, est ensuite appliqué sur le scintillateur pour le fixer au corps du photomultiplicateur pour assurer la tenue mécanique et l'étanchéité à la lumière. Le photomultiplicateur est ensuite monté sur une base en téflon spécialement conçue pour être dépourvue de matières hydrogénées dans laquelle s'insère le circuit imprimé dont le support est en Téflon également (cf. fig. 2.10). Une étude particulière sur les capacités de découplage adoptées par le constructeur a montré qu'elles étaient la cause de fortes variations du gain du photomultiplicateur en fonction de l'amplitude détectée. Celles-ci ont donc été modifiées pour avoir une constante de temps associée $\tau = RC$ de 10 ms : ce temps caractéristique est alors supérieur à trois fois la période du faisceau de GENEPI, le gain est alors stabilisé. Une LED déclenchée périodiquement par rapport au faisceau a aussi été montée sur le scintillateur afin de détecter au cours de l'expérience d'éventuelles variations de gain. Elle envoie périodiquement une impulsion de photons très courte et constante sur le scintillateur. Elle est mise en route quelques minutes en début et en fin d'expérience.

Cet assemblage est alors fixé à l'intérieur d'un étui de plomb de même nature que celui constituant le massif (cf. section 2.1.3). Cet étui de plomb est parallélépipédique de dimensions $300 \times 45 \times 45 \text{ cm}^3$ dans lequel un cylindre de diamètre 30 mm est creusé pour permettre à l'assemblage scintillateur, photomultiplicateur et base de s'insérer (cf. fig. 2.11). Un porte-échantillons en plomb a été confectionné de manière à faciliter les manutentions et rendre reproductible les mesures sans être sensible aux changements d'échantillons. A l'extrémité de cet étui, il est possible de fixer deux tiges filetées en Inox pour pouvoir manipuler l'ensemble dans le bloc lors des changements d'échantillons.

Cet ensemble de précautions nous permet donc de ne pas couper la tension appliquée sur le pho-

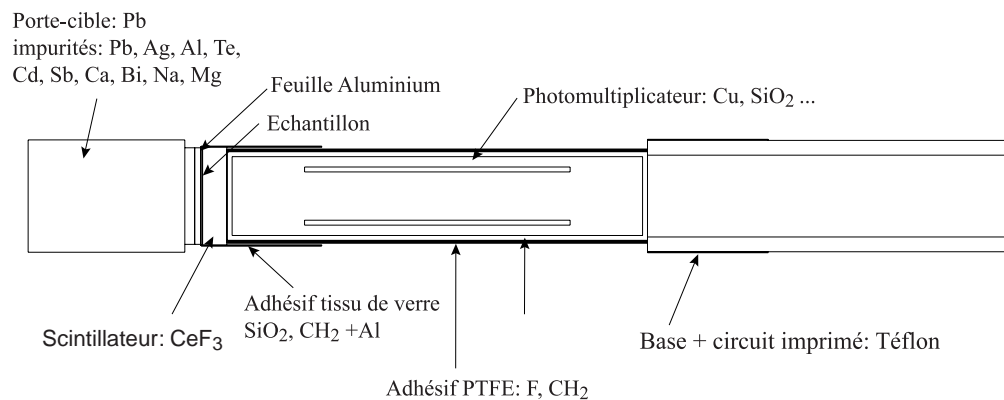


FIG. 2.10 – Schéma du photomultiplicateur avec le scintillateur CeF_3 et les éléments l'environnant tel qu'il est décrit dans les simulations (la LED est absente).

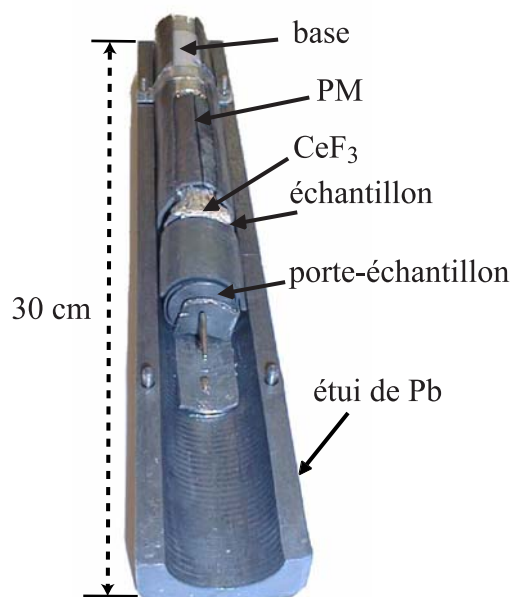


FIG. 2.11 – Photo du photomultiplicateur avec le porte-échantillon monté dans l'étui de plomb dont la partie supérieure à été enlevée.

tomultiplicateur entre deux expériences, d'assurer une variation de gain minimale d'une expérience à l'autre, d'obtenir une bonne reproductibilité des mesures dans le temps du positionnement des cibles dans le massif de plomb.

2.1.7 Électronique associée et système d'acquisition de données

Dans cette expérience, nous avons utilisé des modules électroniques classiquement utilisés en physique nucléaire. La carte d'acquisition a été spécialement conçue pour ce type d'expérience. Cette carte d'acquisition est un codeur ADC pour VME fabriqué à l'ISN doté d'une horloge de 40 MHz ou 100 MHz [44]. Elle nous permet d'enregistrer jusqu'à 8 voies qui peuvent être couplées deux à deux afin de diminuer de 40% environ le temps mort associé au codage logique des signaux. Une voie correspond physiquement à une entrée "temps" (signal logique NIM) et à une entrée "amplitude". Les signaux des détecteurs sont mis en forme pour fabriquer une impulsion rapide signant l'arrivée d'un événement, et une impulsion proportionnelle à l'amplitude du signal.

Ce codeur particulier permet d'obtenir l'amplitude du signal codée sur 13 bits (8 V) ainsi que son temps d'arrivée absolu codé sur 42 bits. Les signaux de tous les détecteurs (photomultiplicateur, hélium 3, jonctions silicium) sont envoyés sur ce codeur, ainsi que la pulsation du faisceau permettant de reconstruire les temps relatifs des événements par rapport à leur impulsion source.

Chaque événement est stocké en un mot de 64 bits. Il contient : le numéro de codeur (dans notre cas, un seul), le numéro de voie sur lequel il a été codé (position sur le codeur), l'amplitude codée du signal, un bit d'empilement si une nouvelle impulsion logique est arrivée avant la fin de la lecture d'amplitude en cours, et enfin le temps. Le système d'acquisition utilisé dans cette expérience est OASIS développé à l'IPN d'Orsay pour le contrôle-commande des expériences. L'amplitude est visualisée sur 8192 canaux et le temps relatif sur 65536 canaux. Les données sont écrites sur disques dans un format binaire spécifique à OASIS ; nous devons effectuer un changement de format lors de l'analyse. Le schéma 2.12 illustre l'ensemble de la chaîne électronique d'acquisition employée à l'ISN lors de cette expérience.

2.1.8 Procédure et conditions expérimentales

Les prises de données se sont réparties de la façon suivante au cours de l'année 1999. Les premières mesures ont été effectuées avec une cible deutérée sur GENEPI. Cela nous a permis de nous familiariser avec le générateur de neutrons dont nous avons utilisé les tout premiers faisceaux. La cible tritiée a été installée seulement dans un deuxième temps. Le faisceau de neutrons étant alors environ 18 fois plus intense qu'avec une cible deutérée, une meilleure statistique dans des temps plus courts a pu être obtenue. Les résultats présentés ici résultent donc de l'analyse de données réalisées avec cette cible tritiée. Compte tenu des divers arrêts de la machine pour des raisons de développement progressif de celle-ci, les prises de données n'ont pu s'effectuer que sur trois mois.

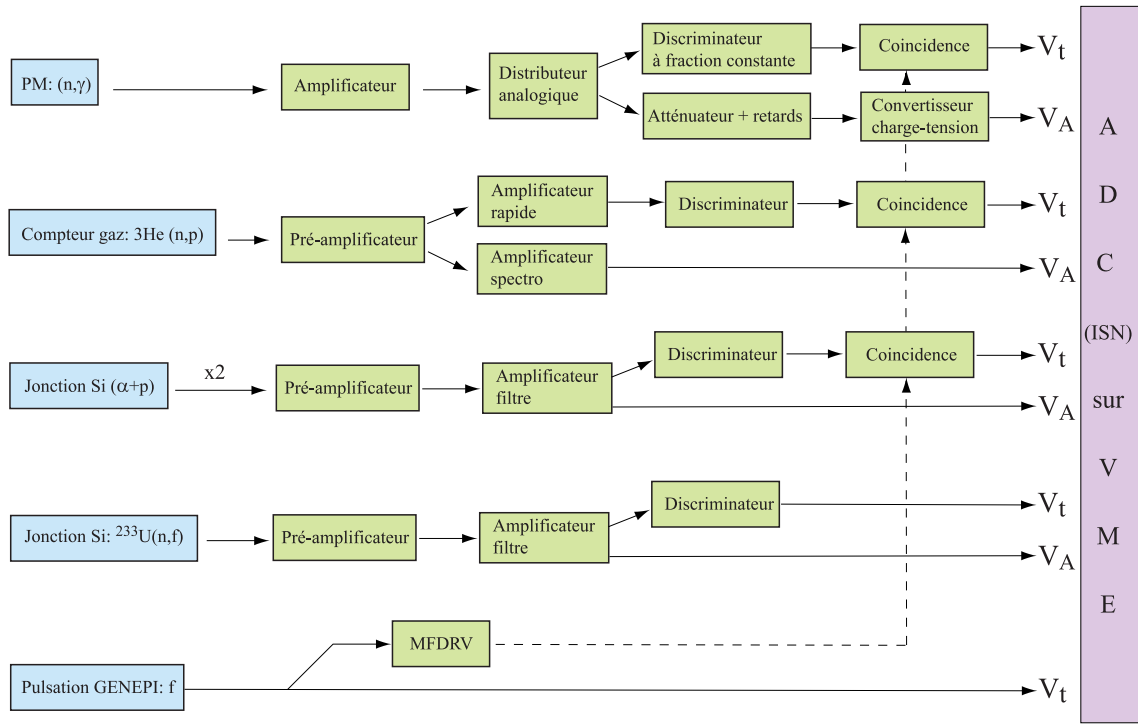


FIG. 2.12 – Schéma de principe de la chaîne électronique et de l'acquisition de l'expérience.

Les mesures du flux de neutrons

Deux irradiations de cibles de Nickel ont été effectuées. Une cible a été placée lors d'une première mesure directement à l'extrémité du doigt de gant de GENEPI afin de déterminer le flux de neutrons émis par la cible de TiT. Les cibles ont ensuite été placées à diverses distances de la source de TiT dans le massif de plomb. Cette cartographie a pour but l'étude de la propagation des neutrons de la source dans le plomb.

Nous avons effectué une seule mesure du taux de fissions sur l'²³³U pour déduire le flux de neutrons en fonction du temps et de l'énergie.

Une étude particulière avec deux compteurs à gaz hélium 3 nous a permis d'étudier la distribution énergétique des neutrons avec précision dans le massif de plomb ainsi qu'à la position des mesures des réactions de capture. Toutes les prises de données avec le détecteur CeF₃ ont été effectuées dans une position unique (environ 30 cm de la cible de TiT). Un détecteur à gaz hélium 3 est présent lors de chaque expérience. Celui-ci est placé dans le canal du massif de plomb symétrique par rapport à l'axe du faisceau de deutons (canal gauche).

Les mesures de taux de réaction de capture

Les mesures des taux de capture (n,γ) se déroulent de la façon suivante: entre deux prises de données effectuées avec un échantillon, une mesure de bruit de fond est réalisée. Cela permet de contrôler une nouvelle fois la stabilité du gain du photomultiplicateur par comparaison des spectres d'amplitude des bruits de fond et d'appliquer d'éventuelles corrections. Il est aussi intercalé un enre-

gistrement de durée de l'ordre de 5 min en supprimant l'interdiction de codage pendant le passage de l'impulsion de neutrons. Cette mesure a pour objet de contrôler la position du maximum de l'impulsion de neutrons.

Lors des mesures (n, γ) , en plus de la présence de la LED suivant l'évolution du gain du photomultiplicateur, le signal d'un générateur d'impulsions est sommé au signal provenant directement du photomultiplicateur. Ce signal est décorrélé de la fréquence de la machine. Cette méthode permet de déterminer le temps mort pour l'ensemble de la chaîne électronique et d'acquisition de la voie du photomultiplicateur.

Nous avons fait le choix de ne pas enregistrer les événements se produisant pendant l'impulsion de neutrons pour limiter le taux d'occupation de l'acquisition pendant les 10 premières microsecondes après la fin de l'impulsion de neutrons. En effet, un de nos objectifs est d'étudier les profils de taux de réaction pour les valeurs en énergie des neutrons les plus grandes possibles (c'est à dire aux temps les plus courts possibles). Il nous est apparu impératif de supprimer les événements se produisant pendant l'impulsion de neutrons ($\pm 0.6 \mu s$ du maximum de comptage). Le signal de déclenchement de la machine a donc été mis en forme (cf. section 2.1.7) pour interdire le codage de ces événements par l'acquisition (veto). Ainsi, cette suppression du codage de l'impulsion de neutrons permet de laisser libre le système d'acquisition immédiatement après le passage de cette impulsion.

L'intensité du faisceau a aussi été adaptée afin d'avoir un taux de comptage pendant les 10 premières microsecondes après l'autorisation de coder limité à 0,1 cps/impulsion. Cela permet d'obtenir une correction de temps mort maximale de 5% pour ces temps de détection.

Enfin, nous avons travaillé pour les expériences de profils de taux de capture neutronique en utilisant deux fréquences : 440 Hz et 220 Hz. Les temps entre deux impulsions de la machine sont respectivement 2,72 ms et 4,54 ms. Si la relation énergie-temps (cf. eq. (2.10)) est supposée valable pour les énergies inférieures à 0,1 eV, ces deux fréquences nous permettent de mesurer à priori des taux de capture ayant lieu jusqu'à 0,03 eV et $8 \cdot 10^{-3}$ eV. A ces énergies, nous sommes assurés que le flux de neutrons est négligeable et que les éventuels neutrons encore présents dans le massif de plomb sont tous thermiques. Nous pourrions donc étudier les processus qui ont lieu dans le bloc de plomb pour de très faibles énergies.

2.1.9 Structure et stockage des données expérimentales

Nous avons vu que les données d'une expérience sont écrites sur disque dur dans un format binaire spécifique au logiciel d'acquisition. De plus, ces événements sont définis par le temps "absolu" auquel ils ont eu lieu par rapport au démarrage de l'acquisition. Il s'agit alors d'être capable d'identifier à quelle impulsion de neutrons source l'événement est associé et de déterminer le temps entre l'impulsion et l'événement. Pour cela il a été développé un premier logiciel d'analyse sous ROOT [45] permettant simplement de changer de format et d'effectuer le changement d'origine des temps événement par événement. Chaque fichier associé à une expérience est converti dans ce format dont il est alors possible d'extraire les données souhaitées. La structure des données dans un fichier est détaillée dans

le tableau 2.6.

Renseignements généraux sur l'expérience		
N° run	Date (JJMMAA)	Source de neutrons
Courant cible	Fréquence GENEPI (Hz)	Δ_t d'un canal
Donnée sur l'événement courant		
Nom du détecteur	Voie du codeur	Nombre de voies (mode couplé)
cible	Canal du bloc	Position dans la canal
Amplitude (canaux)	Bit d'empilement (0 ou 1)	Temps (canaux)

TAB. 2.6 – *Structure des fichiers d'une expérience au format binaire ROOT.*

2.2 Outils de simulation

2.2.1 Introduction du code de simulation MCNP

Pour les études sur les bases de données qui vont être discutées ici, nous avons besoin d'un code de transport de neutrons. Le code MCNP (Monte Carlo N Particles) est un code de transport Monte Carlo développé au LANL (Los Alamos National Laboratory) par l'équipe de John Hendriks et Judith Briesmeister [22]. La première version MCNP1A date d'août 1977, la version MCNP4B avec laquelle nous travaillons ici est parue en février 1998. Ce code permet de simuler le transport des neutrons d'énergie inférieure à 20 MeV et il permet aussi de simuler le transport des photons et des électrons. C'est un code reconnu et validé. Son utilisation intervient dans de nombreux domaines liés à la physique des réacteurs comme les calculs de criticité, mais aussi en radio-protection, détection ... Il ne sera utilisé dans ce travail que la partie traitant du transport de neutrons.

2.2.2 Description de l'ensemble du dispositif expérimental dans le code MCNP

Comme il est souhaité que la simulation décrive le mieux possible la réalité expérimentale, la géométrie en variable d'entrée du code doit être détaillée de façon maximale. La structure des fichiers décrivant le dispositif expérimental pouvant devenir complexe, un code a été développé dans notre équipe pour générer automatiquement cette géométrie dans le format adapté. Le système simulé comprend les murs de protection en béton de l'aire expérimentale, le doigt de gant de GENEPI, la structure de la cible de TiT, les blocs constituant le massif de plomb pourvus de leurs canaux, le socle sur lequel repose le bloc de plomb (cf. fig 2.13). Les détecteurs sont eux aussi décrits à partir de plans ou de photos. Certains éléments sont composés de matériaux de faible importance en ce qui concerne la neutronique. C'est le cas par exemple du compteur à gaz hélium 3 ou du détecteur de fission à l' ^{233}U . A contrario, la description complète du détecteur CeF_3 mesurant les taux de capture neutronique est très importante. Il est entendu par détecteur CeF_3 l'ensemble constitué par le photo-

multiplicateur, la base, le scintillateur, les différents adhésifs, le porte-cible, la cible employée et l'étui de plomb (cf. fig. 2.10).

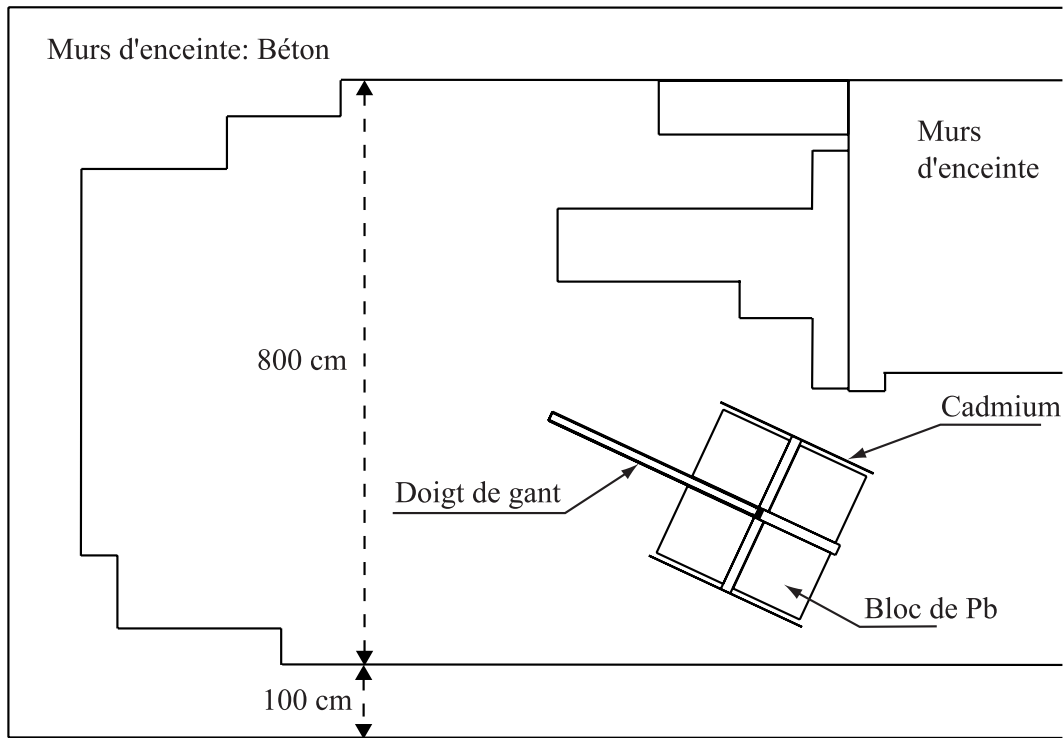


FIG. 2.13 – Schéma de la géométrie entrée dans MCNP avec les murs d'enceinte, le doigt de gant, les blocs de plomb, les détecteurs.

Mais décrire le système uniquement par une géométrie détaillée et juste n'est pas suffisant. Les matériaux et leur densité décrivant les cellules doivent eux aussi être les plus proches de la réalité. Le béton constituant les murs et la structure particulière du socle du massif de plomb peuvent avoir une influence sur les résultats (cf. section 4.2). Le massif de plomb est certes d'une grande pureté mais nous savons qu'il contient des impuretés qui peuvent être tout à fait visibles dans l'expérience en raison de sections efficaces de capture importantes (cas de l'argent). Les réactions sur ces noyaux pourront modifier le flux de neutrons dans le bloc de plomb, il faut donc bien tenir compte de ces noyaux perturbateurs dans la simulation (ex: cf. section 5.1.5).

Dans le cas des mesures avec le détecteur CeF_3 , les γ détectés peuvent provenir de la cible mais aussi de l'environnement proche de la cible. La mesure est donc influencée par la nature des matériaux proches de la cible. La même sensibilité doit être obtenue dans la simulation. Le cas des adhésifs et leur proportion en atomes d'hydrogène constituent un excellent exemple (cf. section 5.2.3).

Enfin, certaines imprécisions viennent parfois d'un manque de renseignements donnés par les constructeurs sur leurs produits. Ce manque peut provenir soit du secret de fabrication, soit de l'éventuelle trop grande précision que nous réclamons.

2.2.3 Paramètres fondamentaux de la simulation : les bases de données

Il vient d'être observé l'importance de la description de la géométrie et des matériaux dans la simulation. Le dernier point à étudier est le choix de la base de données pour le noyau considéré. En effet, plusieurs bases de données accessibles décrivent les sections efficaces d'un même noyau. Il s'agit de ENDF/B-VI (Etats-Unis), JEF-2.2 (Europe), JENDL-3.2 (Japon), BROND-2 (Russie) et CENDL-2 (Chine). Nous avons fait le choix de ne pas travailler avec les bases de données russe et chinoise car le nombre de nucléides disponibles est d'une part moins important et d'autre part elles ne présentent bien souvent aucun désaccord avec les trois autres bases plus couramment utilisées.

La plupart des noyaux intervenant dans la simulation sont décrits par la base de données ENDF/B-VI. C'est le cas des éléments du béton des murs et du socle, des noyaux constituant la structure de GENEPI, ainsi que de la source de neutrons. Parmi les noyaux présents dans les impuretés du plomb, seuls l'antimoine et le tellurium sont décrits par la base de données JENDL3.2. Tous les éléments des détecteurs sont décrits avec la base ENDF/B-VI hormis le cérium du scintillateur pour lequel nous avons choisi la base de donnée JENDL3.2 en raison d'une description supérieure des sections efficaces par rapport à ENDF/B-VI.

Le plomb étant un constituant majeur, nous avons fait le choix d'étudier les résultats produits par deux bases de données : ENDF/B-VI et JENDL3.2 (cf. chap. 4). Les sections efficaces du plomb de JEF2.2 étant identiques à celles de la base américaine, nous ne l'avons pas utilisée. Nous avons aussi simulé les taux de fission de l' ^{233}U avec ENDF/B-VI et JENDL3.2. Ayant vérifié que les sections efficaces (n,p) étaient identiques dans les trois bases pour l'hélium 3, il n'a pas été nécessaire d'effectuer les simulations dans chacun de ces cas.

Pour les taux de capture (n, γ) sur les différents échantillons (cf. section. 5.2.1), nous avons pu effectuer des simulations dans la plupart des cas en utilisant les trois bases de données américaine, japonaise et européenne.

2.3 Conclusions

La description détaillée de l'ensemble de notre installation a été effectuée. Celle-ci se compose d'un générateur de neutrons pulsés et d'un massif de plomb.

Le flux de neutrons est déterminé avec différentes techniques : irradiation de cibles de nickel, fissions de l' ^{233}U et réaction (n,p) sur l'hélium 3.

Le monitoring des expériences est possible grâce à deux systèmes de détection : mesures des α et des protons émis par la cible de TiT, et détection des protons et des tritons dans le compteur à gaz hélium 3.

Les mesures de taux de capture sont effectuées avec un photomultiplicateur de faible dimensions sur lequel un scintillateur CeF_3 est monté.

Une grande rigueur a été apportée sur la procédure expérimentale. Le choix d'une redondance sur

certaines mesures a aussi été choisie afin de permettre une reproductibilité des mesures accrue.

De la description des outils de simulation ressortent différents aspects très importants. Il a d'abord été respecté de façon très précise la géométrie du dispositif expérimental : GENEPI, massif de plomb, détecteurs ... Nous avons vu aussi les contraintes qu'imposent une description détaillée du dispositif expérimental. Il a été enfin mis en avant la difficulté des choix des bases de données pour tous les noyaux mis en jeu.

Chapitre 3

Forme et qualité de la source de neutrons

Nous avons vu plus haut que deux jonctions silicium permettaient de monitorer la production de neutrons induite par les réactions $D(d,n)^3\text{He}$ et $T(d,n)^4\text{He}$ (cf. section 2.1.4). Le suivi de l'évolution de la source de neutrons est fait grâce à ces deux détecteurs. Ils détectent les α et les protons associés aux réactions sur la cible avec un angle de 180° par rapport aux deutons incidents. Ces jonctions permettent de mesurer le temps d'arrivée des α et des protons avec une précision inférieure à 100 ns. Nous allons maintenant voir plus en détail toutes les informations fournies par ces détecteurs lorsque la source est une cible de TiT.

3.1 Spectres en temps et en amplitude des jonctions silicium

Les figures 3.1 et 3.2 montrent les taux de comptage expérimentaux. Ces spectres présentent les réponses des jonctions Si sans la feuille d'aluminium (détecteur α -protons) et avec la feuille d'aluminium (détecteur protons) en fonction de l'amplitude du signal codée et en fonction du temps par rapport à une référence liée à l'impulsion de neutrons. L'unité du spectre en temps a été convertie en microsecondes pour simplifier la lecture ; la position du maximum du pic sur le détecteur (α -protons) a été prise comme référence.

3.1.1 Spectres en amplitude

Avant de détailler la structure de ces spectres nous constatons que le taux de comptage dû aux réactions $T(d,n)^4\text{He}$ est beaucoup plus important que celui dû aux réactions $D(d,p)t$, ce qui se traduit par un rapport des taux de comptage sur les deux détecteurs de l'ordre de 22. On peut s'attendre effectivement à ce que les réactions des deutons incidents sur deutérium implanté soient très peu nombreuses par rapport aux réactions sur la cible proprement dite. Les nombres de particules détectées par impulsion sont en moyenne : $N_{(\alpha+p)/impulsion} = 0,06$ et $N_{(p)/impulsion} = 2,7.10^{-3}$. Nous pouvons

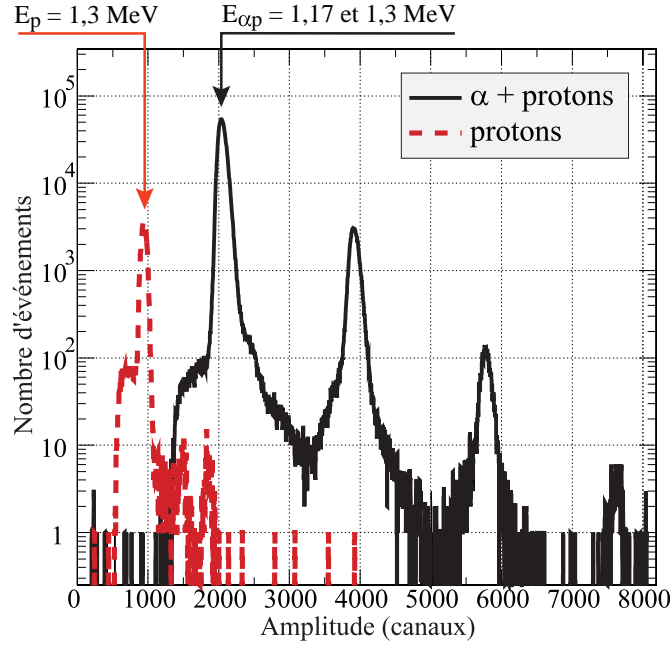


FIG. 3.1 – Réponse des deux jonctions Si en fonction de l'amplitude.

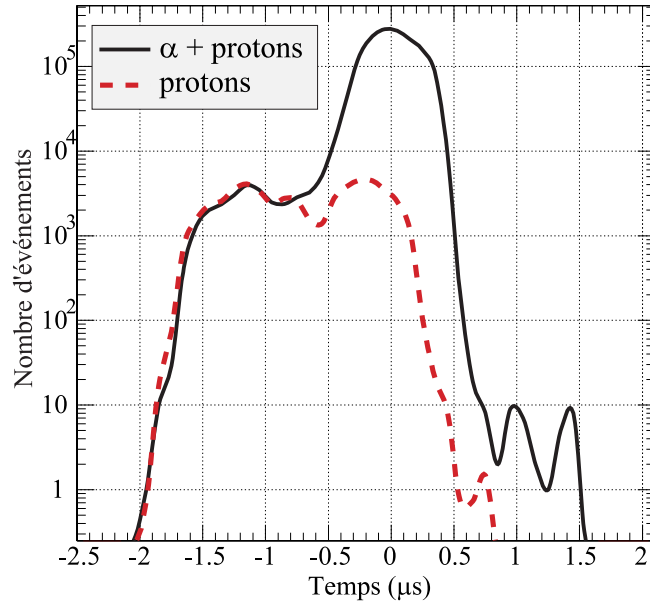


FIG. 3.2 – Réponse des deux jonctions Si en fonction du temps (origine arbitraire).

remarquer que ces taux d'événements nous assurent un temps mort d'acquisition négligeable mais qu'en revanche les informations ne seront exploitables que sur un grand nombre d'impulsions.

Il apparaît très nettement sur la figure 3.1 (échelle logarithmique) plusieurs pics correspondant à la multiplicité de détection des particules sur le détecteur (α -p). Lorsque plusieurs particules arrivent simultanément dans le détecteur (même signal temps) leurs amplitudes s'empilent. La détection d' α étant, comme nous venons de le voir, plus probable, il s'agit essentiellement de la multiplicité des α détectés. En effet la probabilité \mathcal{P} de détecter k particules suit une loi de Poisson de la forme suivante :

$$\mathcal{P}(k) = e^{-\mu} \frac{\mu^k}{k!} \quad \text{où } k \text{ est le nombre de particules détectées.} \quad (3.1)$$

Le paramètre μ est l'espérance de la distribution. Pour le détecteur (α -p), l'espérance prend pour valeur $\mu = 2 \times N_{\text{évt}/\text{impulsion}}$. Dans le pic correspondant à la détection de une seule particule ($k = 1$) sur le détecteur (α -p), les protons se confondent avec les α , nous avons vu que les protons ont à peu près la même énergie (cf. tab. 2.3). Mais ceux-ci sont en bien moins grande quantité. Dans le pic correspondant à la détection de deux particules, la présence d'un ou deux protons est possible mais la probabilité est assez faible.

Le pic de la détection à une particule sur le détecteur (p) et celui du détecteur (α -p) présentent un écart en énergie de 870 keV : 170 keV dus à la différence d'énergie plus environ 700 keV de perte d'énergie des protons dans les 10 μm d'aluminium. L'élargissement des pics de part et d'autre est sans doute dû à la détection de rayons X créés dans l'enceinte par les différentes particules.

3.1.2 Spectres en temps

L'enregistrement des temps d'arrivée par rapport au signal logique de déclenchement de l'impulsion source des particules sur les deux jonctions nous permet de dessiner le profil temporel des sources de neutrons (cf. fig. 3.2). Cette figure présente deux structures à des temps différents. A bas temps, le pic semble rempli essentiellement d'événements protons, tandis qu'aux temps plus élevés les α dominant (réponse du détecteur (α -p)). La comparaison des pics à $t = 0$ pour les deux détecteurs permet de montrer que parmi les particules détectées par la jonction (α -p) environ 2% proviennent de réaction $D(d,p)t$. On peut par conséquent estimer à 2% également la production de neutrons par réactions $D(d,n)^3\text{He}$. Nous avons vu plus haut que ces réactions sur le deutérium venaient suite à l'implantation de deutons du faisceau. La structure en temps peut nous indiquer où ont lieu ces implantations.

La distance entre l'aimant et l'extrémité du doigt de gant est de l'ordre de 4 mètres. Il faut environ 0,8 μs aux deutons incidents de 200 keV d'énergie pour parcourir cette distance. Les protons produits ayant environ 2,46 MeV d'énergie cinétique, le temps pour parcourir la distance cible de TiT au détecteur placé à l'arrière de l'aimant est d'environ 0,2 μs . La somme de ces deux temps (0,8 μs + 0,2 μs) est tout à fait du même ordre de grandeur que le décalage entre les deux maximums des structures observées sur le détecteur (p). Nous pouvons donc interpréter que le premier pic correspond à des réactions $D(d,p)t$ ayant lieu dans l'environnement proche de l'aimant. Ces réactions proviennent probablement d'implantations de deutons, et plus précisément des ions D_2^+ triés par l'aimant lors

du passage du faisceau et qui peuvent être le siège de réactions de production de protons et de neutrons (cf. fig. 2.6).

3.2 Forme temporelle de l'impulsion de neutrons

La description de l'impulsion de neutrons délivrée par GENEPI au niveau de la source de TiT peut être déduite de la forme du spectre en temps donné par la mesure sur la jonction (α -p). La réponse temporelle du compteur à gaz hélium 3 peut aussi nous donner le même type d'information par une sélection des événements se produisant sur ce détecteur pendant l'impulsion. La structure temporelle de l'impulsion peut aussi être obtenue par la mesure du courant cible (cf. section 2.1.4). La figure 3.3 présente la superposition de ces trois impulsions mesurées avec trois méthodes différentes.

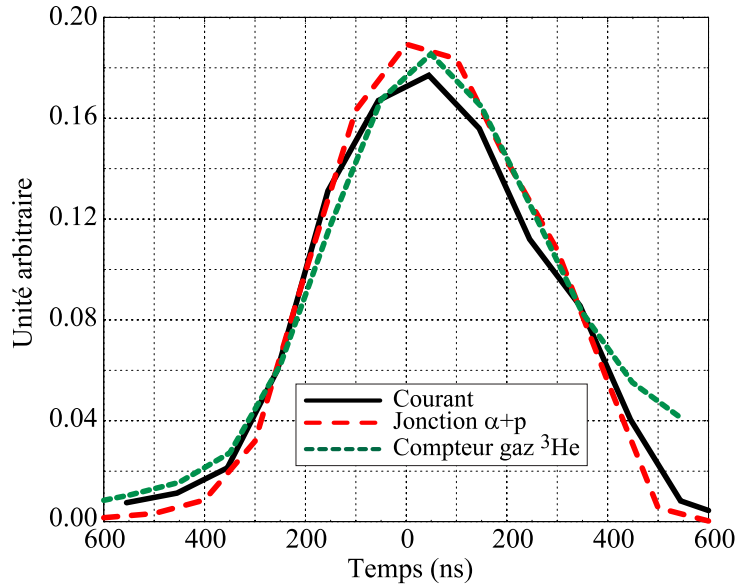


FIG. 3.3 – *Forme temporelle de l'impulsion de neutrons déduite de diverses méthodes expérimentales : mesure du courant sur la cible (ligne continue), détection des α +p (ligne discontinue noire), réaction $^3\text{He}(n,p)t$ (ligne discontinue grise).*

Ces courbes correspondent à une intensité crête de 25 mA, ce qui correspond à l'intensité appliquée pour les mesures de capture (cf. section 2.1.8). La largeur à mi-hauteur est ici de 600 ns. Nous observons un très bon accord sur la forme de l'impulsion de neutrons déduite des différentes méthodes de mesure. Cette forme de l'impulsion sera exploitée lors de la convolution des spectres en temps des taux de réactions simulés (cf. section 4.3.1).

3.3 Fraction de neutrons émis hors impulsion

Le détecteur (α -p) peut aussi nous donner une autre information importante pour nos mesures. Il s'agit du nombre de neutrons, et par conséquent de deutons, émis par GENEPI hors de l'impulsion.

Ces événements peuvent conduire à une pollution de nos résultats. L'impulsion de neutrons est définie ici par les événements ayant lieu sur la cible. Les neutrons émis temporellement hors de l'impulsion de neutrons sont les événements se produisant dès la fin de l'arrivée des derniers α ou protons sur les jonctions, soit $T > 1,5\mu s$ (cf. fig. 3.2). La figure 3.4 présente la réponse en temps de la jonction ($\alpha+p$) avec la sélection en amplitude montrée sur la figure 3.5. Cette sélection est effectuée afin que le spectre ne soit pas affecté par un éventuel bruit de fond.

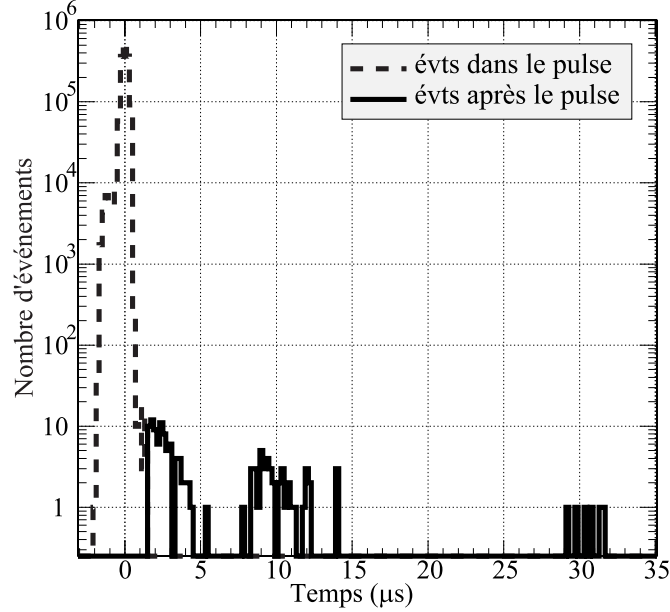


FIG. 3.4 – *Spectre en temps des α +protons mesuré avec la jonction silicium sans la feuille d'aluminium, sélection en amplitude telle que $1600 < A < 2300$ (cette coupure correspond à la probabilité de détecter une seule particule).*

Nous pouvons remarquer que la position du pic des événements émis hors de l'impulsion est décalé d'environ 130 canaux par rapport au pic des événements émis dans l'impulsion. Ce décalage reste non expliqué. Néanmoins, ces événements correspondent bien à des α ou des protons détectés dans la jonction silicium, l'énergie déposée par les particules semblent simplement être plus faible d'environ 200 keV.

Il est clair que des neutrons sont produits après le passage de l'impulsion de neutrons. Des coups sont visibles jusqu'à environ 35 μs après le maximum de l'impulsion. Nous pouvons procéder de la même façon pour la réponse de l'autre jonction (détecteur (p)). Les résultats des comptages ($N \pm \sqrt{N}$) pour les deux jonctions pendant et après l'impulsion de deutons sont réunis dans le tableau 3.1.

Moins d'un neutron sur 10000 est émis après l'impulsion de neutrons, ce qui n'affecte pas nos résultats. Ces événements pourraient être dus à une irrégularité sur la tension d'extraction dans la source de GENEPI.

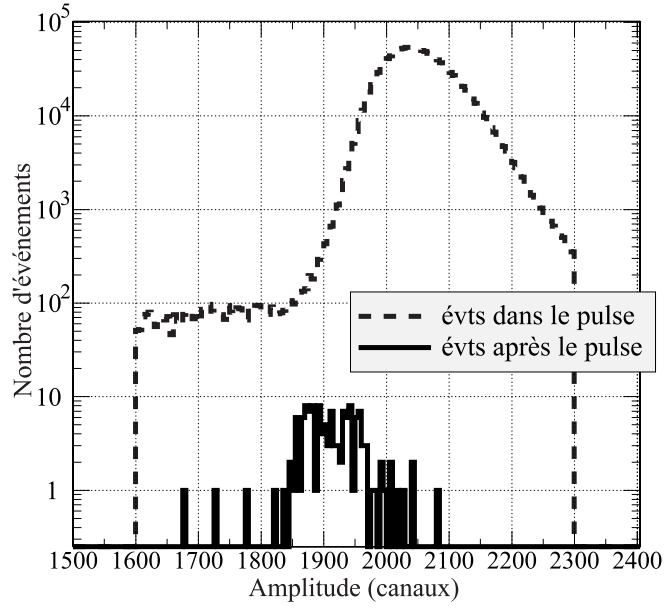


FIG. 3.5 – *Spectre en amplitude des α +protons mesuré avec la jonction silicium sans feuille d'aluminium : sélection du pic de probabilité de détection d'une seule particule.*

	détecteur (α -p)	détecteur (p)
dans l'impulsion	1451178 ± 1205	70908 ± 266
après l'impulsion	133 ± 12	8 ± 3
Rapport	$(9,2 \pm 0,8) \cdot 10^{-5}$	$(11. \pm 4) \cdot 10^{-5}$

TAB. 3.1 – *Nombre d'événements pendant et après l'impulsion de neutrons détectés avec les deux jonctions silicium ; rapport des comptages pour déterminer la proportion des neutrons émis hors impulsion.*

3.4 Stabilité de la fréquence des impulsions de GENEPI

La référence en temps de toute notre analyse repose sur l'instant où l'impulsion du générateur de fréquences qui pilote la machine est produite. Nous devons donc étudier les variations du décalage temporel entre l'instant où sont émis les neutrons et l'instant où le signal de déclenchement a lieu pendant les expériences. Pour cela, nous avons étudié systématiquement ce décalage. Cette étude est menée directement à partir des enregistrements de la fréquence délivrée par la machine pendant les expériences. L'étude a porté sur les deux fréquences avec lesquelles nous avons essentiellement travaillé : 220 Hz et 440 Hz. Les figures 3.6 et 3.7 présentent les dispersions des temps entre deux impulsions autour du temps moyen entre deux impulsions pour deux expériences distinctes. Les écarts en temps sont traduits en fréquence pour illustrer la dispersion des fréquences autour de la fréquence moyenne.

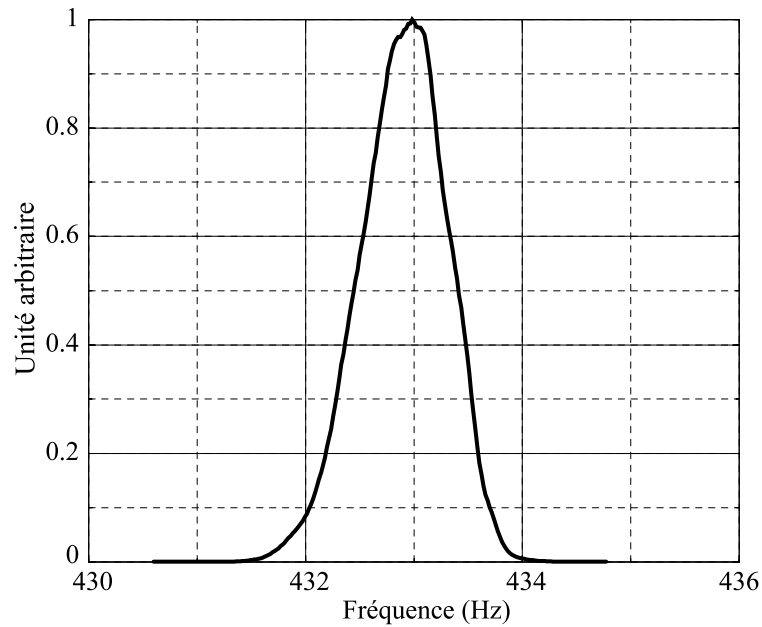


FIG. 3.6 – Variation de la fréquence autour de la valeur moyenne 433 Hz pendant une expérience.

Nous pouvons observer que la variation de fréquence est en relatif à peu près identique pour ces deux fréquences appliquées à la machine. L'écart de fréquence autour de la valeur moyenne est d'environ 0.5%.

Lors de l'analyse des données, le fait que le temps entre deux impulsions de neutrons varie de 0.5% au cours d'une expérience ne pose pas de difficultés. En effet, le temps affecté à chaque événement est un temps relatif par rapport au déclenchement de GENEPI.

Enfin, nous avons vérifié qu'il n'y avait pas de variation du temps entre l'impulsion de déclenchement d'arc et l'arrivée des deutons sur la cible. Cette variation resterait dans tous les cas très inférieure à la largeur temporelle de l'impulsion de neutrons qui est d'environ 1 μ s.

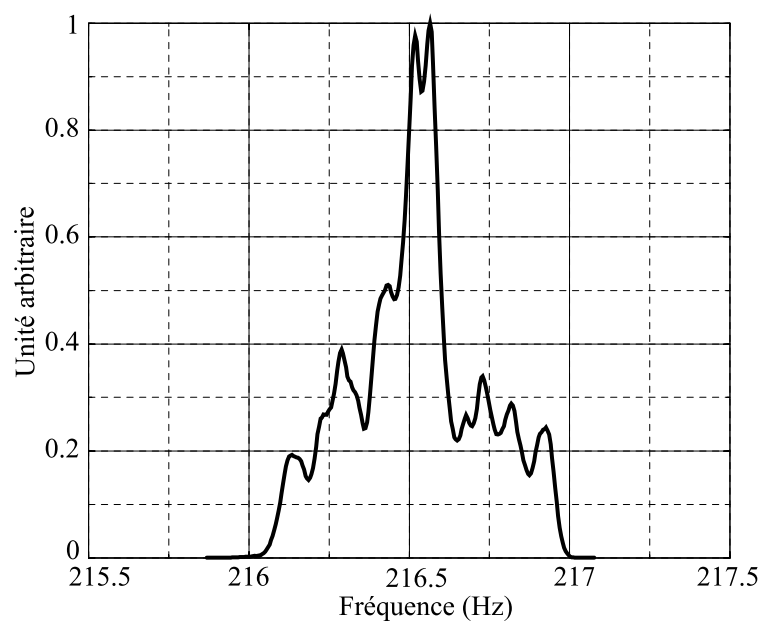


FIG. 3.7 – *Variation de la fréquence autour de la valeur moyenne 216 Hz pendant une expérience.*

Chapitre 4

Étude du flux de neutrons : validation expérimentale du flux simulé

Les études décrites dans un premier temps portent sur la description du flux de neutrons expérimental émis par la cible de TiT placée à l'extrémité du doigt de gant. Nous étudierons ensuite la relation énergie-temps (cf. eq. 2.10) obtenue par simulation et sa validation par l'expérience. Enfin, les spectres expérimentaux des flux de neutrons mesurés avec le détecteur de fissions à l' ^{233}U et le compteur à gaz ^3He seront confrontés aux simulations.

4.1 Mesure absolue de la production de neutrons de 14 MeV

4.1.1 Nombre de neutrons émis par la cible de TiT

Comme nous l'avons déjà vu dans la section 2.1.4, l'irradiation de cibles ayant des sections efficaces (n,p), (n,2n) et (n,np) à seuil et produisant des noyaux dont les durées de vie sont supérieures à quelques heures nous permet de déterminer le flux de neutrons source dans le bloc de plomb. Les seuils de chacune de ces réactions sur l'isotope 58 du Nickel sont respectivement 1 MeV, 13 MeV et 12 MeV. Les noyaux produits par ces réactions sont alors ^{58}Co ($T_{1/2} = 70,86\text{ j}$), ^{57}Ni ($T_{1/2} = 35,6\text{ h}$) et ^{57}Co ($T_{1/2} = 271,74\text{ j}$). L'énergie des neutrons produits étant comprise entre 15,1 MeV et 13,4 MeV, nous évaluons le nombre de neutrons à partir des réactions (n,2n) et (n,np). La détermination du flux absolu de neutrons est effectuée à partir d'échantillons placés très près de la cible de TiT afin de minimiser l'influence du transport des neutrons dans le massif de plomb.

Compte tenu du seuil trop bas (1 MeV) de la réaction (n,p), nous ne pouvons utiliser cette dernière pour déterminer le flux de neutrons émis par GENEPI avec une cible de TiT produisant des neutrons de l'ordre de 14 MeV. En effet des réactions dans le plomb sont possibles avant l'interaction dans la cible de Nickel. Une simulation a montré que la proportion des neutrons d'énergie supérieure au seuil de la réaction (n,p) qui reviennent dans la cible placée à l'extrémité du doigt de gant est d'environ 15%. Les

réactions $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ et $^{58}\text{Ni}(n,np)^{57}\text{Co}$ dont les seuils de réaction sont élevés, nous garantissons qu'il s'agira de la première interaction du neutron. La cible de nickel naturel de 285 mg a été placée à 7,3 cm de l'extrémité du doigt de gant. L'irradiation a duré 13,4 heures avec une fréquence de 2000 Hz. Nous allons voir ici comment le flux de neutrons est déterminé par deux méthodes différentes : la première exploite uniquement les résultats expérimentaux et une estimation des sections efficaces (n,2n) et (n,np) (méthode 1), la deuxième méthode conjugue l'expérience et des simulations (méthode 2).

a - Utilisation de la réaction (n,2n)

Une fois irradiée, la cible est placée devant un compteur germanium. Pour la réaction (n,2n), le noyau produit ^{57}Ni a une durée de vie de 35,6 heures, et décroît par capture électronique vers le ^{57}Co . Le schéma 4.1 illustre les différentes quantités utiles pour l'analyse d'une irradiation. La mesure du nombre de coups N_{comp} dans le pic associé à la raie γ de 1224 keV nous permet de déterminer l'activité $\mathcal{A}_0 = \frac{\lambda N_{comp}}{1 - e^{-\lambda t_{comp}}}$ du ^{57}Ni au début de la mesure avec le compteur germanium.

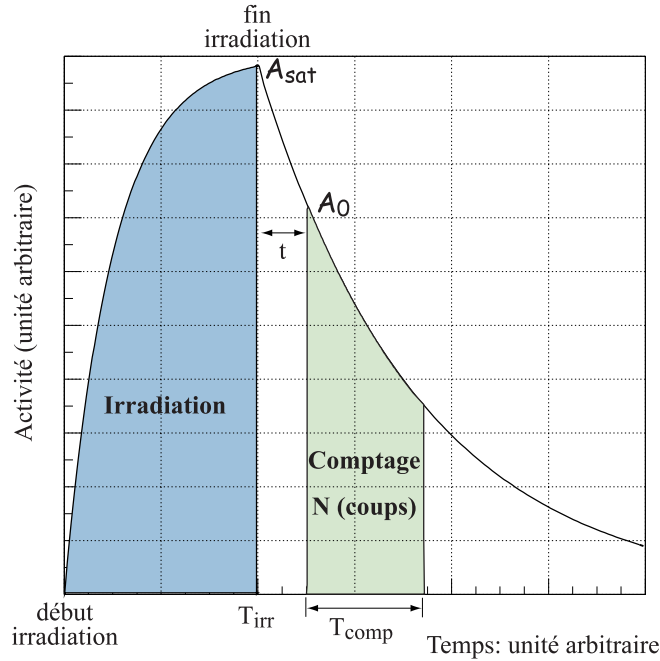


FIG. 4.1 – Schéma de principe d'une irradiation et de la mesure des γ de désintégration : Activité de la cible en fonction du temps.

Nous pouvons donc aisément déduire l'activité à saturation, c'est à dire celle à l'arrêt de l'irradiation. De plus, si la section efficace de la réaction considérée est notée $\sigma_{(n,2n)}$, l'activité d'un échantillon de N_{at} placé dans un flux de neutrons Φ (quantité à déterminer) après un temps d'irradiation T_{irr} s'écrit :

$$\mathcal{A}_{sat} = N_{at} \sigma_{(n,2n)} \Phi \left(1 - e^{-\lambda T_{irr}} \right) \quad (4.1)$$

L'activité à saturation, déduite du comptage des γ de désintégration avec le germanium, prend la

forme suivante :

$$\mathcal{A}_{sat} = \frac{\mathcal{A}_0}{e^{-\lambda t}} = \frac{\lambda N_{comp}}{1 - e^{-\lambda t_{comp}}} \frac{1}{e^{-\lambda t}} \quad (4.2)$$

Le facteur $\frac{1}{e^{-\lambda t}}$ tient compte des désintégrations de l'échantillon entre la fin de l'irradiation et le début du comptage. Il est négligeable dans le cas du ^{57}Ni si le comptage est effectué rapidement après l'irradiation ($\frac{1}{e^{-\lambda t}} \approx 1$).

Les équations (4.1) et (4.2) permettent de déduire l'expression du flux $\Phi_{cible\ Ni}$ de neutrons dans l'échantillon :

$$\Phi_{cible\ Ni} = \frac{\mathcal{A}_{sat}}{N_{at}\sigma_{(n,2n)}(1 - e^{-\lambda T_{irr}})} \quad (4.3)$$

$$= \frac{N_{comp}\lambda}{N_{at}\sigma(1 - e^{-\lambda t_{comp}})(1 - e^{-\lambda t_{irr}})e^{-\lambda t}} \quad n/cm^2.sec \quad (4.4)$$

Connaissant la surface S_{ni} de la cible de nickel placée à la distance r de la cible de TiT ($r = 7,3\text{ cm}$), nous pouvons déterminer l'angle solide formé par la cible de nickel et l'extension de la source de neutrons de GENEPI :

$$\frac{d\Omega}{4\pi} = \frac{S_{ni}}{4\pi r^2} \quad (4.5)$$

Le flux de neutrons au niveau de la cible de TiT se déduit alors comme le produit du flux de neutrons traversant la cible de nickel de surface S_{ni} par $4\pi r^2$:

$$\Phi_{cible\ TiT} = \Phi_{cible\ Ni} \times 4\pi r^2 \quad (4.6)$$

Connaissant la fréquence f du faisceau, le nombre de neutrons émis par la cible de TiT à chaque impulsion du générateur s'écrit donc :

$$\Phi_{TiT\ imp} = \frac{\Phi_{cible\ TiT}}{f} \quad (4.7)$$

L'activité \mathcal{A}_0 mesurée avec le compteur germanium déduite de l'intégrale du nombre de coups N_{comp} dans le pic du γ de 1224 keV associé à la réaction $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ est de 60,9 Bq. La valeur de la section efficace $\sigma_{(n,2n)}$ extraite est de l'ordre de 35 mbarns à 14,5 MeV (cf. fig. 4.2(a)). Le flux de neutrons $\Phi_{cible\ Ni}$ dans la cible de nickel située à environ 5 cm de la cible de TiT est donc de $3,82.10^6\text{ n/cm}^2/\text{sec}$. Le flux total $\Phi_{cible\ TiT}$ émis par la cible de TiT est alors de $2,56.10^9$ neutrons/sec en 4π . La quantité de neutrons $\Phi_{TiT\ imp}$ émise par impulsion de neutrons lors de cette expérience est donc de $1,28.10^6$ neutrons. L'erreur relative sur cette valeur est estimée à 20% ; elle tient compte de l'erreur sur la mesure du nombre de coups déterminée avec le compteur germanium, de l'erreur sur la connaissance de la section efficace (n,2n) du ^{58}Ni (cf. fig. 4.2(a)) et de l'erreur portant sur la distance entre l'échantillon de nickel et la cible de TiT.

b - Utilisation de la réaction (n,np)

L'exploitation des résultats obtenus en considérant la réaction (n,np) sur le ^{57}Ni donne les résultats suivants: le γ détecté par le compteur germanium est celui à 122 keV du ^{56}Fe . L'activité \mathcal{A}_0 mesurée est de 7,19 Bq. La valeur de la section efficace $\sigma_{(n,np)}$ extraite de la figure 4.2(b) est 0,6 barns à 14,5 MeV. On détermine comme précédemment le flux de neutrons dans la cible de nickel soit $\Phi_{cible\ Ni} = 4,1.10^6$ n/cm²sec. La quantité de neutrons émise à chaque impulsion de la machine est alors de: $\Phi_{TiT\ imp} = 1,37.10^6$ neutrons/impulsion. Cette valeur est tout à fait compatible avec le nombre de neutrons déterminé par l'utilisation de la réaction (n,2n).

c - Utilisation des simulations

Le nombre de réactions ayant lieu dans la cible de nickel peut être calculé avec MCNP. De la simulation, nous pouvons connaître le taux de réaction $\sigma\Phi_r$ sur le nickel 58 par neutron émis pour la réaction considérée ((n,2n) ou (n,np)). Les rapports des taux de réaction simulés avec les activités à saturation \mathcal{A}_{sat} sont effectués. Le nombre de neutrons émis par impulsion de la machine est calculé de la façon suivante (f est la fréquence du faisceau) :

$$\Phi_{TiT\ imp} = \frac{\mathcal{A}_{sat}}{f \times \sigma\Phi_r} \quad (4.8)$$

Le nombre de neutrons émis par impulsion déduit par la réaction (n,2n) a pour valeur $(1,23 \pm 0,32)10^6$ n/imp, par la réaction (n,np), il est déterminé $(1,54 \pm 0,38)10^6$ n/imp. Ces valeurs restent compatibles entre elles.

d - Le flux de neutrons absolu : conclusion

Le tableau (4.1) regroupe les différentes valeurs du nombre de neutrons émis par la cible de TiT à partir des irradiations d'échantillons de nickel déterminées par les deux méthodes.

	Méthode 1	Méthode 2
Réaction (n,2n)	$(1,28 \pm 0,26)10^6$ n/imp	$(1,23 \pm 0,32)10^6$ n/imp
Réaction (n,np)	$(1,37 \pm 0,27)10^6$ n/imp	$(1,54 \pm 0,38)10^6$ n/imp

TAB. 4.1 – Nombre de neutrons émis par la cible de TiT à chaque impulsion, détermination à partir des réactions (n,2n) et (n,np) sur le ^{58}Ni avec deux méthodes différentes.

Un bon accord est observé entre les deux méthodes pour les deux réactions. Les erreurs sont relativement importantes en raison des différentes incertitudes lors de la détermination du nombre de neutrons émis par impulsion. Ces erreurs proviennent principalement de la différence de positionnement de l'échantillon entre la mesure et la simulation, des erreurs sur les sections efficaces de réaction du nickel et de la définition de la distribution de la source de TiT dans la simulation.

Les figures 4.2(a) et 4.2(b) illustrent la difficulté de choisir la valeur des sections efficaces à extraire [46]. Nous pouvons observer aussi les écarts entre les bases de données et les valeurs expérimentales

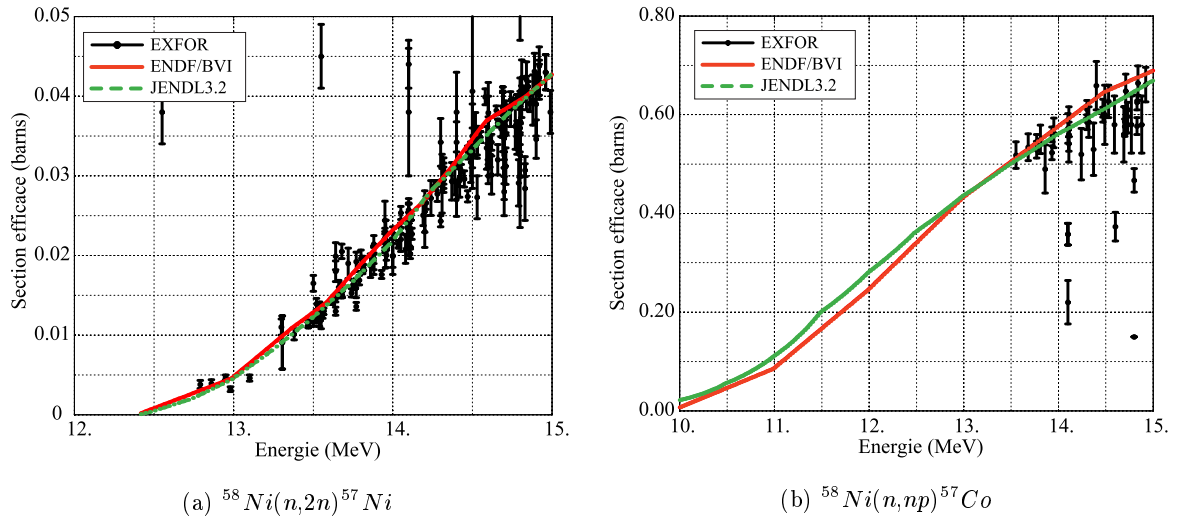


FIG. 4.2 – *Superposition des sections efficaces du ^{58}Ni : comparaison des données expérimentales de EXFOR avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2: application aux réactions $(n,2n)$ et (n,np) .*

extraites d'EXFOR [47]. La base EXFOR regroupe les données expérimentales de sections efficaces.

Nous avons donc vu que le flux de neutrons est déterminé par des méthodes de mesure similaires en traitant deux réactions distinctes: $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ et $^{58}\text{Ni}(n,np)^{57}\text{Co}$. Du tableau (4.1), nous pouvons déduire une valeur moyenne du nombre de neutrons émis à chaque impulsion soit: $(1,36 \pm 0,16)10^6$ n/imp.

La détermination du nombre de neutrons ne tient pas compte de la contribution des réactions $\text{D}(d,n)^3\text{He}$ suite aux implantations des ions deutérium dans la cible en raison des seuils des réactions traitées. Nous avons vu que leur contribution s'élevait à environ 2% (cf. section 3.1.2). Compte tenu de l'erreur importante observée sur le nombre de neutrons par impulsion, nous ne sommes pas en mesure de vérifier cette proportion. Seule une mesure plus précise permettrait éventuellement de connaître le flux de neutrons total délivré par GENEPI. Cette mesure devrait être effectuée sans le massif de plomb, il serait ainsi possible d'exploiter les mesures d'activité du ^{58}Co (réaction $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$).

Enfin, nous faisons remarquer qu'il est possible de connaître le nombre de neutrons émis dans chacune des autres expériences ($\Phi(t)$, $\sigma_{(n,\gamma)}\Phi(t)$) grâce à la présence systématique des détecteurs utilisés pour le contrôle: compteur à gaz ^3He et détecteur à jonction silicium (α p).

Pour conclure, nous pouvons observer que la détermination absolue du flux des neutrons émis par GENEPI peut être effectuée dans le bloc de plomb. Cette méthode est tout à fait transposable auprès du réacteur de recherche MASURCA. Celle-ci semble même particulièrement adaptée en raison du flux de neutrons de fission supplémentaire (cf. section 2.1.4). Cette méthode permet de distinguer les neutrons de la source de ceux de fission dans le réacteur de recherche.

4.1.2 Propagation des neutrons source dans le plomb

Avec une telle installation, nous pouvons aussi étudier le comportement des neutrons de haute énergie dans le massif de plomb (cf. section 2.1.4). Pour cela, des échantillons de nickel de diamètre 2 cm, d'épaisseur 0,2 mm ont été placés en divers points du bloc de plomb (cf. fig. 4.3). La méthode d'analyse utilisée est la même que précédemment (cf. section 4.1.1).

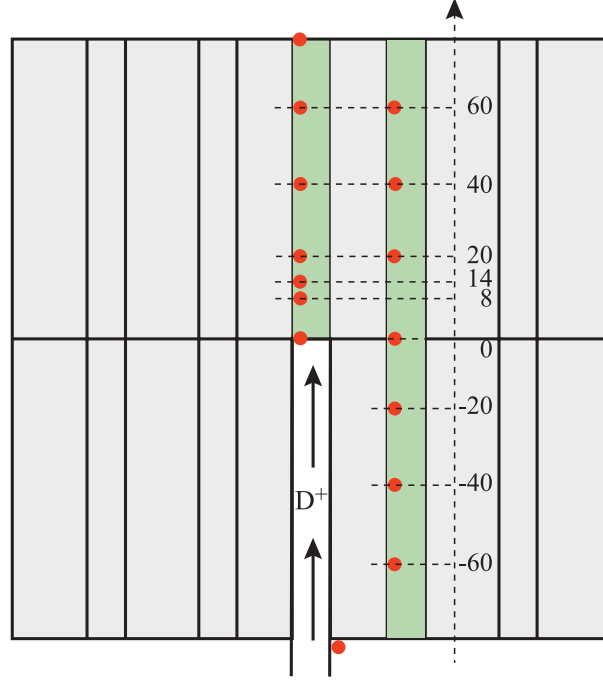


FIG. 4.3 – Coupe horizontale du massif de plomb : carte du positionnement des cibles de nickel dans les canaux.

Une simulation a aussi été effectuée avec MCNP. Les cibles ont été réparties dans le bloc de plomb de façon à respecter les conditions expérimentales. Dans ces cibles, le calcul des taux de réaction (n,2n), (n,np) et (n,p) sur le ^{58}Ni est effectué. L'influence de la base de données du nickel a été étudiée mais n'a pas montré d'écart significatif. Nous ne présentons donc que les résultats simulés avec la base ENDF/B-VI pour le nickel.

Pour cette simulation, il est important de définir de façon précise la distribution des neutrons émis par GENEPI. En effet, les réactions (n,2n) et (n,np) sur le ^{58}Ni ne sont sensibles qu'aux neutrons n'ayant eu que très peu (voire aucune) interactions avec le plomb. Elles sont donc une image directe de la source. Or bien que les effets avant-arrière soient relativement faibles dans la réaction $T(d,n)\alpha$, les neutrons émis à 0° sont plus énergiques que ceux émis à un angle supérieur (cf. section 2.1.1) [27]. Les sections efficaces (n,2n) et (n,np) varient très rapidement dans cette région d'énergie ($E > 11$ MeV) en raison de la proximité des seuils de ces réactions. La variation d'énergie avec l'angle d'émission pourra avoir une influence importante sur nos grandeurs simulées.

Pour une même base de données du nickel, deux simulations utilisant les bases JENDL3.2 et

ENDF/B-VI du plomb ont mis en évidence des écarts sur les taux de réaction (n,2n) et (n,np) de l'ordre de 9% après 10 cm de plomb.

La figure 4.4(a) présente les activités à saturation mesurées avec le compteur germanium pour chacune des réactions étudiées en fonction de la distance de plomb traversée entre la cible de TiT et la position de l'échantillon de nickel. La figure 4.4(b) présente les taux de capture (n,2n), (n,np) et (n,p) sur le ^{58}Ni simulés dans les échantillons en fonction de la distance de plomb traversée.

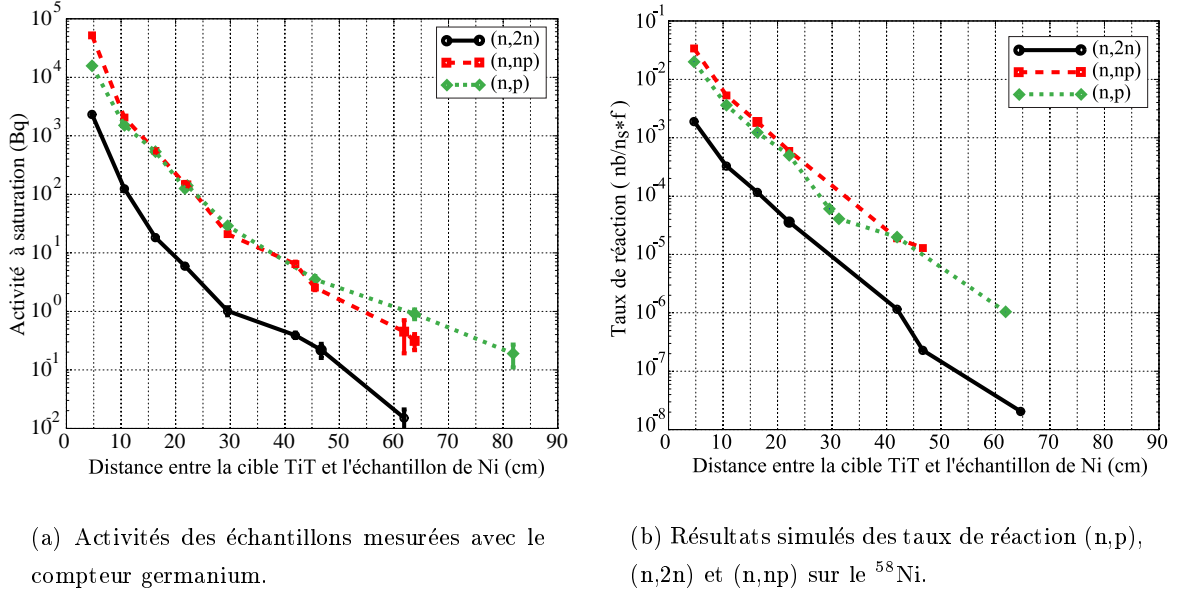


FIG. 4.4 – *Propagation des neutrons d'énergies supérieures à 3 MeV dans le massif de plomb avec trois réactions à seuil différentes : simulations et expérience.*

Une réduction du flux de neutrons en fonction de la distance de plomb traversée est clairement observable. La section efficace totale du plomb est de l'ordre de 5,5 barns (cf. fig. 2.5). Le libre parcours moyen dans le plomb ($\lambda = \frac{1}{\sigma_N}$) associé est de l'ordre de 5,5 cm au-dessus de 11 MeV. Tant que l'énergie est supérieure à 10 MeV, les sections efficaces de diffusion élastique et (n,2n) du plomb ont à peu près la même valeur. Le neutron a donc environ une chance sur deux d'effectuer une réaction (n,2n) qui entraîne une perte d'énergie importante pour l'un des deux neutrons. Les neutrons créés auront une énergie inférieure au seuil des réactions (n,np) et (n,2n) du ^{58}Ni et ne produiront pas ensuite de telles réactions.

Dans le cas d'une diffusion élastique, le neutron perdant environ 1% de son énergie, celui-ci possédera encore une énergie supérieure au seuil des réactions sur le nickel. Pour les cibles de nickel très proches de la source, la probabilité que ce neutron ait la bonne direction et interagisse avec la cible de nickel sera faible. Ces processus sont dominants uniquement dans une sphère d'environ 10 cm autour de la cible de TiT. Au-delà, l'épaisseur de plomb traversée devient trop importante, la probabilité d'avoir encore un neutron d'énergie supérieure au seuil des réactions (n,p), (n,2n) et (n,np) diminue très rapidement. La fonction qui décrit le mieux cette réduction du flux de neutrons avec la

distance de plomb traversée est la suivante :

$$f(d) = \frac{1}{d^{4,5}} \quad d \text{ est la distance de plomb traversée.} \quad (4.9)$$

Nous pouvons maintenant comparer les résultats expérimentaux et simulés. La figure 4.5 présente la superposition des mesures de l'activité à saturation du ^{57}Ni avec le taux de réaction $(n,2n)$ simulé en fonction de la distance de plomb. Le spectre expérimental est normalisé au point correspondant à la plus faible distance entre la cible de TiT et l'échantillon de nickel (4,8 cm) de la simulation. Le facteur de normalisation ($1,24 \cdot 10^6$ n/imp) est directement relié au nombre de neutrons émis par impulsion $\Phi_{TiT \text{ imp}}$. Nous pouvons faire remarquer que cette quantité est parfaitement compatible avec celles du tableau (4.1).

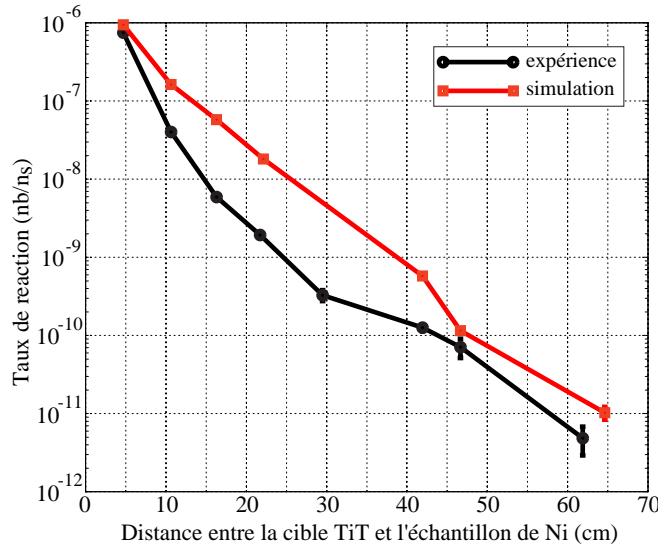


FIG. 4.5 – Taux de réaction $(n,2n)$ sur le ^{58}Ni simulé et expérimental en fonction de la distance entre la cible de TiT et l'échantillon de nickel.

Nous pouvons observer un important désaccord entre l'expérience et la simulation. Un facteur 10 existe entre le calcul et l'expérience pour des distances de plomb entre 15 cm et 40 cm. Différentes hypothèses ont été émises pour expliquer cet important désaccord. Celui-ci peut être dû au cumul de différents effets : les incertitudes sur les sections efficaces du nickel ainsi que sur les distributions angulaires des neutrons mais aussi éventuellement les sections efficaces du plomb au-dessus des seuils en énergie des réactions $(n,2n)$ et (n,np) du nickel peuvent entraîner d'importantes variations. Les erreurs sur la définition angulaire et l'extension de la source de TiT peuvent aussi avoir des influences importantes. Les erreurs sur la position des cibles de nickel dans la simulation par rapport à l'expérience ne jouent qu'un rôle secondaire dans le désaccord. Il s'avérerait nécessaire de refaire cette mesure. Une des difficultés importantes soulevées par ces expériences, outre le soin à apporter lors de la mesure, est de connaître au préalable de façon précise la distribution angulaire des neutrons et l'extension de la source de neutrons. L'étude de la source de neutrons ne peut être effectuée qu'en ayant retiré le massif de plomb. L'expérience de la propagation des neutrons d'énergie entre 1 MeV et 15 MeV ne

peut être faite que dans un deuxième temps.

Néanmoins, la méthode d'activation de cibles de ^{58}Ni par des réactions à seuil permet d'étudier la variation de flux de neutrons sur plus de cinq ordres de grandeur. Cette méthode semble tout à fait appropriée pour des mesures de la propagation du flux de neutrons de haute énergie dans des massifs constitués de matières différentes. Ce même type d'étude est aussi envisageable sur le réacteur sous-critique MASURCA.

4.2 Caractérisation du bloc de Plomb

4.2.1 La relation énergie-temps à partir de la simulation

Nous avons vu précédemment que l'énergie d'un neutron émis au centre d'un massif de plomb était fortement corrélée à son temps de ralentissement (cf. section 2.1.3). Nous allons étudier ici les aspects fondamentaux de cette corrélation en utilisant les résultats des simulations.

La description de la source de neutrons adoptée pour ces simulations a été simplifiée par rapport à celle qui avait été adoptée pour les simulations du flux de neutrons de haute énergie (cf. section 4.1.2). En effet, le neutron ne connaît plus les conditions dans lesquelles il a été créé après environ $0,5 \mu\text{s}$ de temps de ralentissement (cf. section 2.1.3). C'est pourquoi nous pouvons nous permettre cette simplification de la description de la source de neutron. Nous avons alors choisi de supprimer la dépendance angulaire de l'émission du neutron en fonction de l'énergie. Il a été vérifié alors par une simulation que cette modification n'aurait pas d'influence pour les temps de ralentissement supérieurs à $0,5 \mu\text{s}$. De plus la largeur de l'impulsion de neutrons étant de cet ordre de grandeur, nous ne pourrions donc pas voir expérimentalement l'influence de la géométrie de la source de neutrons.

Le flux de neutrons $\Phi(E,T)$ a été calculé dans une cellule de section carrée de 2 cm de côté et d'épaisseur $10 \mu\text{m}$. Les dimensions de cette cellule sont tout à fait comparables avec celles des échantillons sur lesquels les taux de réaction sont mesurés. Elle est placée devant le scintillateur du photomultiplicateur. Ce flux doit par conséquent être sensible à l'environnement proche : scintillateur, photomultiplicateur, étui de plomb.

Les distributions du flux de neutrons en fonction de l'énergie et du temps ont été simulées pour deux bases de données du plomb : ENDF/B-VI et JENDL3.2. La base JEF2.2 n'a pas fait l'objet de simulation pour le plomb, l'observation des sections efficaces de ce matériau a montré la similitude de cette base avec ENDF/B-VI.

a - La matrice du flux de neutrons $\Phi(E,t)$

La figure 4.6 présente la distribution des neutrons à l'endroit de mesure des taux de réactions (n,γ) , soit à environ 30 cm de la source de production des neutrons. L'énergie cinétique E et le temps de ralentissement t des neutrons traversant la cellule sont portés respectivement en ordonnée et en abscisse.

Le maximum situé à 14 MeV et $10^{-2} \mu\text{s}$ correspond aux neutrons provenant directement de la

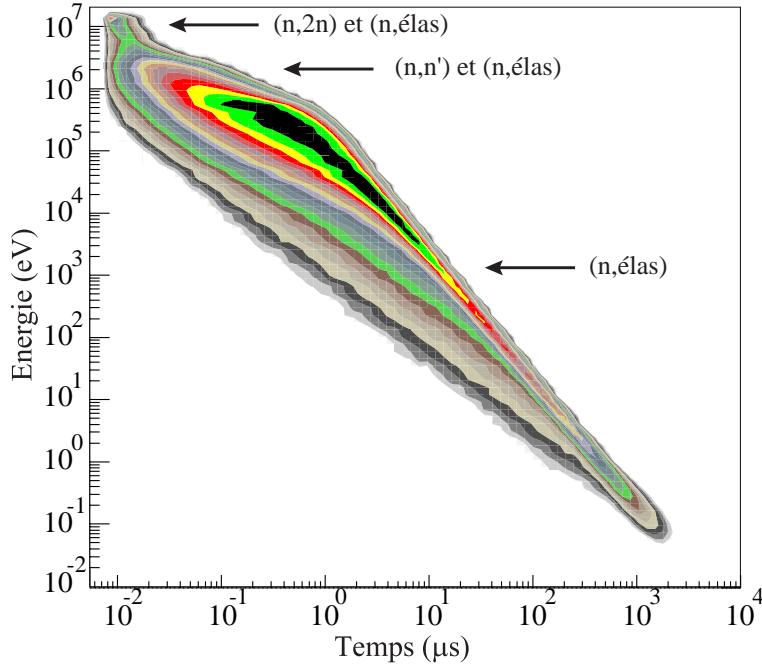


FIG. 4.6 – *Distribution des neutrons à l'endroit de mesure des captures neutroniques en fonction de l'énergie cinétique et du temps de ralentissement dans le bloc de plomb (base de données du Pb : JENDL3.2).*

source de TiT et traversant les 30 cm de plomb sans effectuer d'interaction. Nous pouvons observer que, dès lors que des interactions ont eu lieu à haute énergie, un étalement brutal en temps et en énergie s'effectue. Ceci est principalement dû à des interactions (n,2n) puis (n,n') : le neutron perd beaucoup d'énergie lors de ces interactions. Cela reproduit bien l'élargissement observé. Dès que le seuil de diffusion inélastique est atteint, nous pouvons observer le regroupement des neutrons suivant la relation énergie-temps. La dispersion de la distribution pour les temps longs associés aux énergies inférieures à 0,1 eV rend compte de l'agitation thermique des atomes de plomb. Entre 1 μ s et 1 ms de temps de ralentissement, le flux de neutrons est aussi sensible aux diffusions élastiques sur les noyaux légers tel que l'hydrogène présent dans l'adhésif du photomultiplicateur (cf. section 2.1.6). Cela entraîne une perte d'énergie par choc supérieure pour un temps de ralentissement donné (cf. section 5.2.3).

Une simulation a permis d'étudier la contribution des neutrons s'échappant du bloc de plomb et revenant dans celui-ci. 99% de ces neutrons ont diffusé sur la partie du socle constituée de plomb. Ils suivent la même relation énergie-temps que les neutrons ne diffusant que sur les noyaux de plomb du massif. Ces neutrons ne sont donc pas pénalisants. Les diffusions dans les murs et la partie en béton du socle ne contribuent qu'à un pour cent du flux de neutrons dans le massif. Cette faible quantité ne modifie pas notablement la relation énergie-temps.

La distribution représentée sur la figure 4.6 vérifie la relation moyenne $E = \frac{K}{(t+t_0)^2}$ liant l'énergie cinétique E des neutrons à leur temps de ralentissement t dans le plomb entre 1 μ s et 800 μ s.

b - Détermination de la valeur de K par la simulation

Si la représentation du flux de neutrons Φ en fonction de l'énergie E en ordonnée et de $\sqrt{K(E,t)} = (t + t_0)\sqrt{E}$ en abscisse est adoptée (cf. fig. 4.7), nous pouvons déterminer la valeur de K pour chaque valeur d'énergie cinétique E .

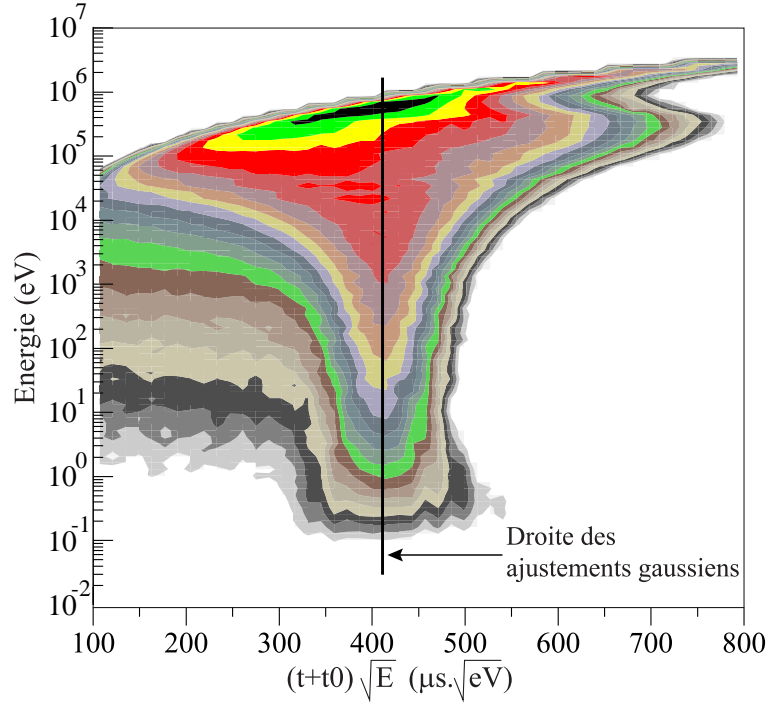


FIG. 4.7 – *Distribution des neutrons à l'endroit de mesure des captures neutroniques en fonction de l'énergie cinétique et de la variable $\sqrt{K(E,t)}$ en $\sqrt{eV}.\mu s$ dans le bloc de plomb (base de données du Pb : JENDL3.2).*

En effet, pour une valeur fixée de l'énergie cinétique du neutron, il y a une distribution du flux en fonction de la variable $\sqrt{K(E,t)}$. Un ajustement par une gaussienne est appliqué à ces distributions, la position du maximum permet d'accéder à la valeur de K pour l'énergie cinétique E du neutron. La figure 4.8 illustre ces ajustements pour différentes valeurs d'énergies. Les distributions présentent un flux non nul pour les valeurs de \sqrt{K} inférieures à $300 \sqrt{eV}.\mu s$ en raison des diffusions élastiques sur les atomes d'hydrogène. Les neutrons perdant rapidement de l'énergie, il est possible d'avoir des neutrons à des temps de ralentissement plus faibles.

La distribution des valeurs moyennes de ces gaussiennes est ensuite ajustée par une droite entre 0,5 eV et 5 keV. La valeur de cet ajustement permet de déterminer la valeur moyenne du paramètre caractéristique K du bloc de plomb. Le paramètre t_0 est fixé de façon à minimiser la dispersion des valeurs de K en fonction de E sur la plus grande gamme d'énergie possible. Ce paramètre t_0 prend pour valeur $0,48 \pm 0,1 \mu s$.

Pour déterminer le paramètre K du massif de plomb, nous avons développé deux approches du traitement des données simulées avec le code MCNP. Les valeurs des flux extraites des simulations

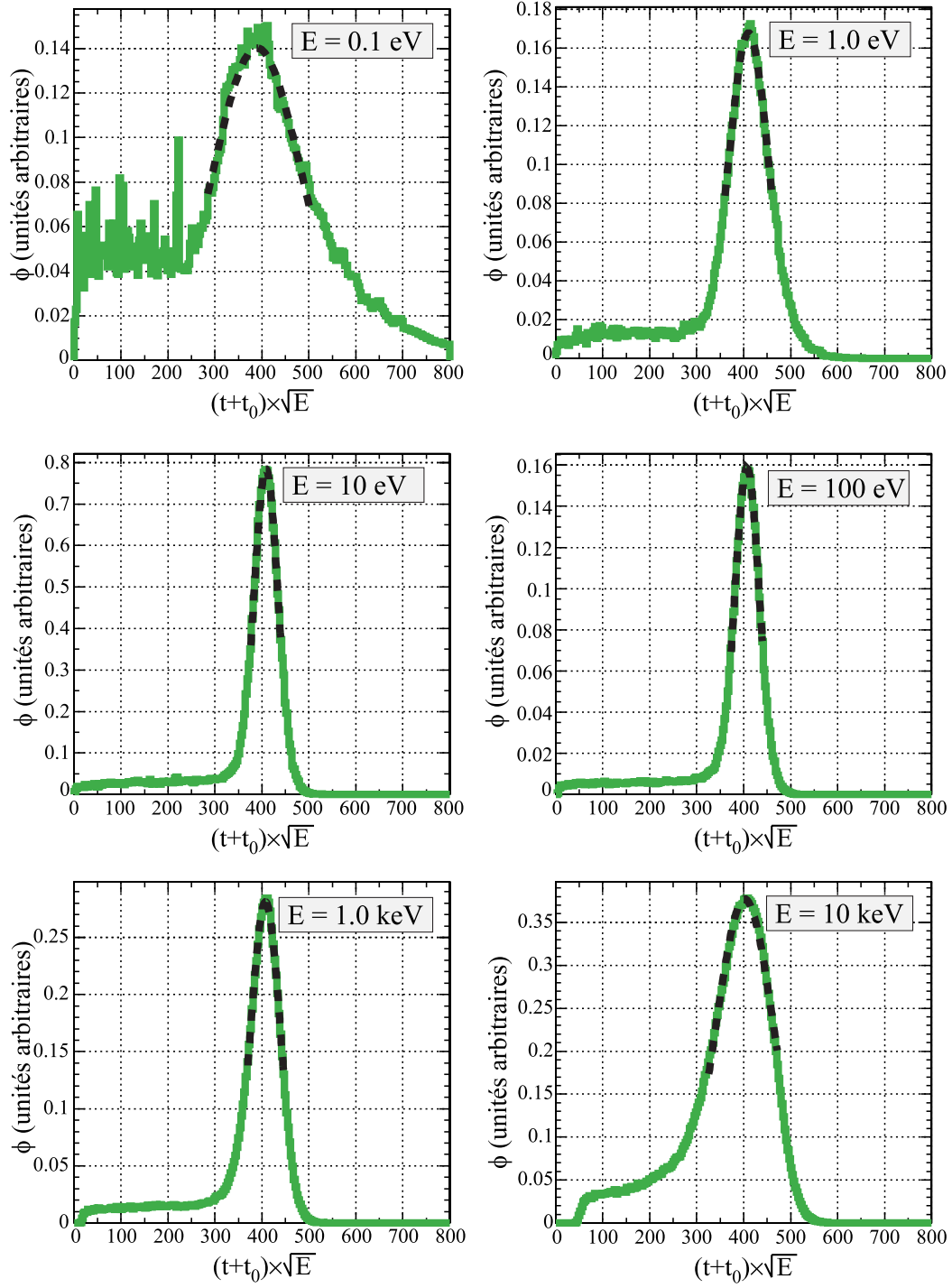


FIG. 4.8 – Ajustements pour différentes énergies par une gaussienne des distributions de flux en fonction de $\sqrt{K(E,t)}$ obtenus par une simulation utilisant la base de données JENDL3.2 pour le plomb.

correspondent à des cellules $\Delta E \times \Delta t$: $\Phi(\Delta E, \Delta t)$. Dans le cas de la première méthode, dite point par point, la valeur du flux est associée au centroïde en temps et en énergie de la cellule, il est donc construit une matrice $\Phi(E_c, t_c)$. Grâce à l'équation : $\sqrt{K} = (t + t_0)\sqrt{E}$, on extrait ensuite pour chaque valeur de l'énergie E_c , la distribution $\Phi_{E_c}(\sqrt{K_c})$. Les distributions $\Phi_{E_c}(\sqrt{K_c})$ sont ensuite ajustées par une gaussienne selon la procédure décrite précédemment. Dans la deuxième méthode, dite histogramme, le changement de variable ($t \rightarrow \sqrt{K} = (t + t_0)\sqrt{E}$) est effectué directement sur la matrice $\Phi(\Delta E, \Delta\sqrt{K})$. Pour un canal ΔE donné, l'histogramme $\Phi_{\Delta E}(\Delta\sqrt{E})$ est ajusté pour déterminer la valeur de K dans le canal d'énergie ΔE .

A travers ces deux méthodes, il s'agit de montrer la difficulté d'obtenir la valeur du paramètre K simulée du bloc de plomb sachant que les deux techniques employées ne donnent pas les mêmes résultats en utilisant néanmoins comme point de départ les mêmes valeurs simulées. La figure 4.9 illustre pour la matrice énergie-temps calculée, avec la même base de données pour le plomb, les écarts obtenus avec ces deux techniques. Cet écart, d'environ 1,1% (cf. tab. 4.2), est relativement faible.

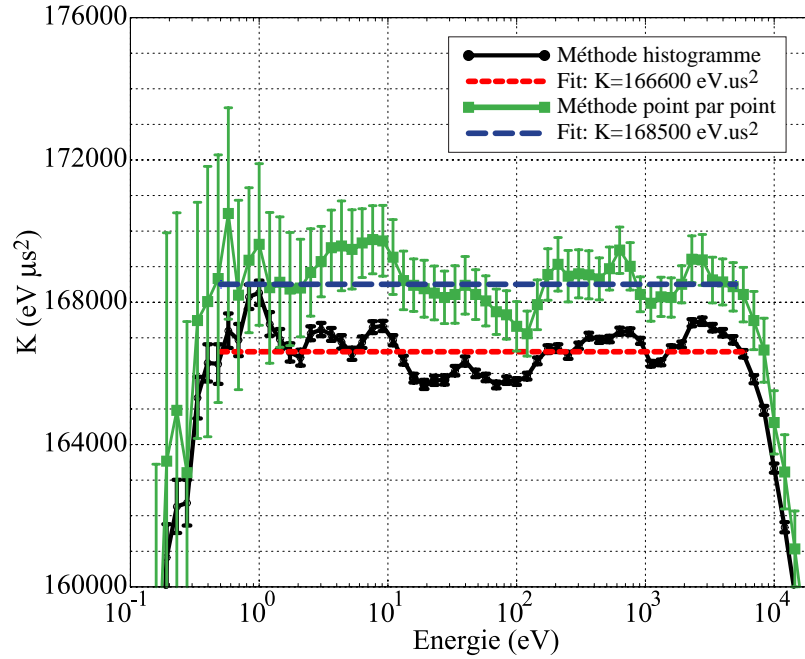


FIG. 4.9 – Application des méthodes “point par point” et “histogramme” de traitement des données de la matrice de $\Phi(E, t)$ simulée avec la base JENDL3.2 pour le plomb pour la détermination du paramètre K du massif. On observe un écart de 1,1% entre les deux méthodes.

Nous pouvons appliquer ces méthodes à chacune des distributions $\Phi(E, t)$ simulées avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2. La figure 4.10 montre la variation du paramètre K en fonction de l'énergie cinétique du neutron pour les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 du plomb avec la méthode point par point.

Nous observons une dépendance des distributions $K(E)$ aux deux bases de données. Nous avons vérifié que cet écart de l'ordre de 2,9% est indépendant de la méthode de détermination du paramètre

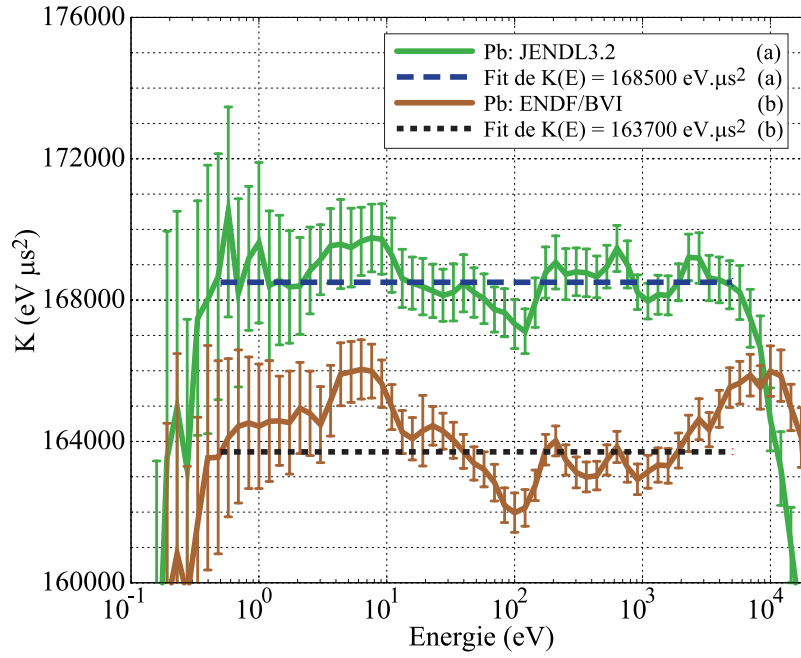


FIG. 4.10 – Détermination de la valeur moyenne du paramètre K en fonction de l'énergie cinétique du neutron pour les bases de données *JENDL3.2* et *ENDF/B-VI* du plomb avec la méthode “point par point”. $K = 168500 \text{ eV} \cdot \mu\text{s}^2$ (*JENDL3.2*) et $K = 163700 \text{ eV} \cdot \mu\text{s}^2$, soit $\frac{\Delta K}{K} \simeq 2,9 \%$

K employée. Le tableau (4.2) regroupe les valeurs du paramètre K déterminé par les deux méthodes et avec les deux bases de données. Les écarts relatifs observés entre les méthodes et l'utilisation des bases de données y sont également présentés.

Bases de données (Pb)	Méthodes		Écart relatif entre les méthodes
	Histogramme	Point par point	
JENDL3.2	166610 ± 20	168500 ± 100	1,13 %
ENDF/B-VI	161830 ± 10	163700 ± 100	1,15 %
Écart relatif entre les bases de données	2,91 %	2,89 %	

TAB. 4.2 – Valeurs du paramètre K déduites des simulations avec les bases de données *JENDL3.2* et *ENDF/B-VI* du plomb et calculées par deux méthodes différentes.

L'effet dû à la méthode n'est pas pénalisant car l'écart relatif est le même quelle que soit la base de données choisie. Pour une même méthode, le désaccord induit reste le même entre les bases de données du plomb. Nous pouvons conclure qu'il existe bien une sensibilité du paramètre K à la base de données utilisée pour le plomb. Cet écart relatif provient des différences dans les sections efficaces de diffusion du plomb de ces deux bases de données. En effet, l'expression de K théorique, dans laquelle $\sigma_{(n,elas)}$ est supposée constante (cf. eq. 2.12), montre une dépendance avec le carré du libre parcours moyen de

diffusion du neutron dans le milieu modérateur. Or d'après l'équation (2.6), le libre parcours moyen varie comme l'inverse de la section efficace. Le paramètre K du neutron varie donc comme l'inverse du carré de la section efficace. L'écart relatif de K autour de la valeur moyenne peut alors prendre la forme donnée par l'équation (4.10) :

$$K \simeq \frac{M_n (1 - \beta)^2}{2\beta^2 n^2} \frac{1}{\sigma_{diff}^2} \implies \frac{\Delta K}{K} \sim 2 \frac{\Delta \sigma}{\sigma} \quad (4.10)$$

Entre 0,1 eV et 1 keV, la section efficace de diffusion du plomb dans la base de données JENDL3.2 a pour valeur environ 11,07 barns, celle extraite de ENDF/B-VI est de l'ordre de 11,19 barns. L'écart relatif entre ces deux bases de données dans cette région d'énergie est de 1,1%. Les valeurs théoriques de K que l'on peut calculer à partir de l'équation (4.10) ont pour valeurs 167530 eV. μ s² pour JENDL3.2 et 163960 eV. μ s² pour ENDF/B-VI. Ces deux valeurs calculées sont plus proches des valeurs déduites de la simulation avec la méthode point par point (cf. tab. 4.2). Nous pouvons observer aussi que l'écart relatif induit par les deux valeurs de la section efficace du plomb est environ deux fois l'écart relatif des sections efficaces de diffusion du plomb.

Il apparaît après cette étude que l'utilisation de bases de données du plomb légèrement différentes ne donne pas les mêmes valeurs du paramètre K du massif. Ces différences, bien que faibles, sont amplifiées dans la relation liant l'énergie cinétique du neutron à son temps de ralentissement. Seuls les résultats expérimentaux peuvent trancher entre ces deux bases (cf. section 4.2.2).

c - Dispersion associée à la relation énergie-temps

Enfin, hormis la détermination des paramètres K et t_0 du massif de plomb, il faut définir la dispersion en énergie de la relation énergie-temps de manière à rendre compte de la réalité (cf. section 2.1.3). La dispersion des vitesses Δv des neutrons autour de la vitesse moyenne v à un instant donné a été définie dans la section 2.1.3, nous en rappelons ici l'expression théorique : $D = \frac{\overline{\Delta v^2}}{v^2} = \frac{2}{3A} + \frac{kT}{4E}$. L'équation (2.14) exprime la dispersion de l'énergie des neutrons. Il est possible de déterminer cette dispersion à partir de la matrice du flux $\Phi(E, \sqrt{K})$ simulée. En effet, comme nous l'avons vu, la détermination de K est effectuée par des ajustements gaussiens des distributions $\Phi(\sqrt{K})$ à l'énergie E . La variable \sqrt{K} est égale à $(t + t_0)\sqrt{E}$, nous pouvons donc dériver, à t fixé, la relation :

$$\sqrt{K} = (t + t_0)\sqrt{E} \quad (4.11)$$

$$\text{soit } \frac{d\sqrt{K}}{\sqrt{K}} = \frac{1}{2} \frac{dE}{E} \quad (4.12)$$

Nous pouvons donc voir qu'au temps t , la dispersion en énergie ΔE autour de l'énergie cinétique moyenne E des neutrons, est fonction de la largeur $\Delta\sqrt{K}(E)$ portant sur la détermination de la valeur moyenne de $\sqrt{K}(E)$ soit :

$$\frac{\Delta E}{E} = 2 \frac{\Delta\sqrt{K}}{\sqrt{K}} \quad (4.13)$$

La figure 4.11 montre les dispersions en énergie des neutrons en fonction de leur énergie cinétique obtenues par les simulations avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour le plomb.

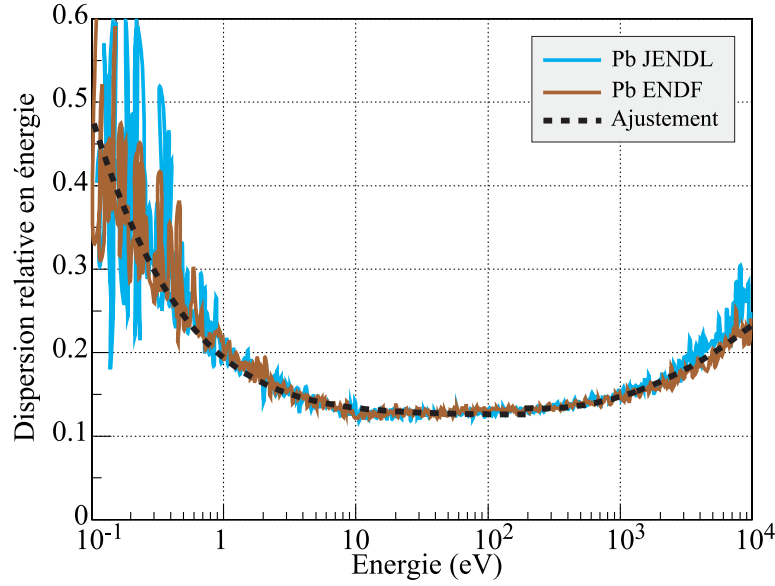


FIG. 4.11 – *Dispersions relatives en énergie $\frac{\Delta E}{E}$ de la relation liant l'énergie cinétique du neutron avec son temps de ralentissement dans le plomb : simulation avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour le plomb. La courbe en tiret est l'ajustement par les fonctions (4.14) de ces dispersions.*

Les dispersions en énergie simulées avec deux bases de données différentes pour le plomb ne présentent pas de désaccord entre 0,1 eV et 10 keV. En effet, la dispersion des vitesses des neutrons autour de la valeur moyenne en énergie est principalement gouvernée par la distribution en énergie des neutrons après le choc sur un noyau de plomb (cf. eq. 2.13). La remontée observée au-dessous de 10 eV est liée à l'agitation thermique des noyaux de plomb. Nous observons donc bien que la dispersion en énergie n'est plus dominée avant tout par la section efficace de diffusion du neutron sur les noyaux de plomb.

Une paramétrisation [29] satisfaisante de la dispersion $\frac{\Delta E}{E}(E)$ est la suivante :

$$\frac{\Delta E}{E} = \begin{cases} 7,4 \cdot 10^{-3} \left(\ln \frac{E}{248,04} \right)^2 + 0,133 & \text{pour } 200 \text{ eV} \leq E < 10 \text{ keV} \\ 0,1254 \sqrt{1 + \frac{1,40}{E}} & \text{pour } 0,1 \text{ eV} < E < 200 \text{ eV} \end{cases} \quad (4.14)$$

4.2.2 Détermination expérimentale de la corrélation temps de ralentissement-énergie et comparaison avec la simulation des taux de capture

Nous venons de montrer qu'une sensibilité aux bases de données du plomb dans la simulation lors de la détermination du paramètre K existait. Nous allons étudier comment grâce aux données expérimentales de capture, il est possible de déterminer quelle est la base de données du plomb qui

décrit le mieux la diffusion des neutrons dans le plomb du massif.

La détection des γ de capture sur divers échantillons ayant des résonances de capture à diverses énergies est effectuée avec le détecteur CeF_3 (cf. section 2.1.6). Nous renvoyons le lecteur au chapitre 5 pour la description de l'analyse des données expérimentales et simulées pour obtenir les spectres en temps de taux de réaction manipulés ici.

Au temps de ralentissement t , compte tenu de la relation liant l'énergie cinétique du neutron à son temps de ralentissement, nous pouvons connaître aisément l'énergie du neutron au moment de la réaction de capture sur l'échantillon placé devant le scintillateur. Le neutron d'énergie E , au temps de détection t , lors de son passage dans l'échantillon, peut avoir une grande probabilité d'être capturé dans celui-ci suivant la section efficace de capture de la cible. Ayant une plus forte probabilité de réaction (n, γ), le nombre de cascades créées augmente, et la probabilité d'avoir un signal à ce temps de ralentissement est plus importante. On obtient donc un spectre de probabilités de réaction de capture en fonction du temps pour chaque échantillon placé devant le scintillateur.

De la même façon, le code de simulation MCNP peut calculer le taux de réaction en fonction du temps sur les échantillons ayant les mêmes caractéristiques géométriques que celles des mesures expérimentales. La figure 4.12 présente la superposition du taux de réaction expérimental normalisé par le nombre d'événements détectés par le compteur à gaz (le moniteur neutron) avec la simulation sur une cible d'or de $125 \mu\text{m}$ d'épaisseur.

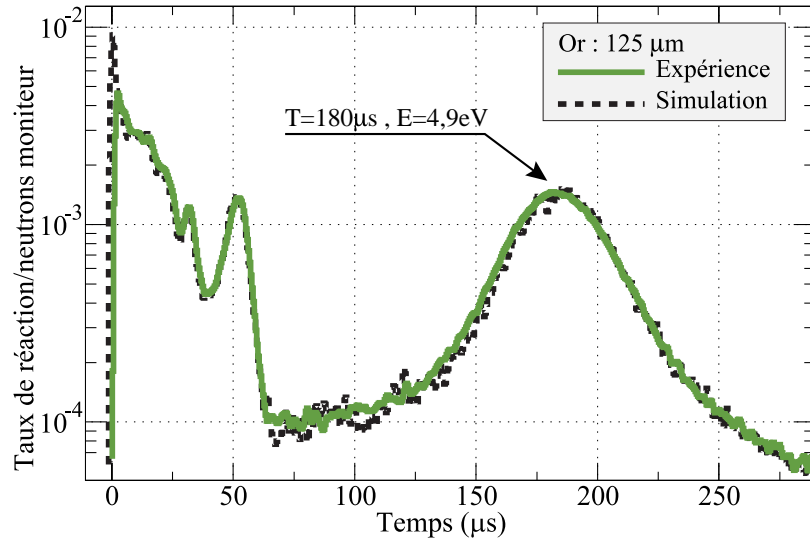


FIG. 4.12 – Taux de réaction de capture expérimental et simulé d'une cible d'or de $125 \mu\text{m}$ d'épaisseur.

Nous pouvons observer que la résonance de l'or à 4,9 eV est visible au temps de ralentissement de l'ordre de $180 \mu\text{s}$. Les maximums observés aux temps plus petits ne correspondent pas à des taux de réaction sur des résonances de l'or unique. La résolution du massif de plomb est telle qu'à ces temps de ralentissement, dans le cas de l'or notamment, il n'est pas possible de séparer les résonances, il s'agit de groupe de résonances.

La détermination des couples (E_r, T_r) déduits de la simulation utilisant les bases de données

JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb et de l'expérience par une méthode identique doit nous permettre de pouvoir déterminer la base de données la plus satisfaisante. Il est important de noter que si les énergies des résonances E_r sont relativement bien connues dans les tables, les positions en temps t_r des résonances doivent être analysées avec précision. En effet, la dispersion des vitesses des neutrons (la résolution du massif de plomb) entraîne l'élargissement des résonances en fonction du temps.

Nous avons vu que les simulations avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb ont permis de déterminer deux valeurs de K dont l'écart était seulement de 3%. Il s'agit donc de déterminer la valeur de K expérimentale à partir des positions temporelles des résonances avec une erreur inférieure à 1,5% afin de pouvoir connaître la base de données du plomb qui décrit le mieux la réalité.

Pour effectuer cette étude, nous n'avons pas pris en compte les noyaux dont la comparaison des résonances de capture dans la région des résonances résolues extraites des différentes bases de données n'étaient pas identiques. Cela nous permet d'avoir confiance dans la détermination de la position temporelle des résonances par la simulation. Il a donc été conservé pour cette étude parmi nos échantillons effectivement mesurés : Au, Ag, Ta, In, Mo.

Différentes fonctions d'ajustement ont été testées, l'ajustement par une gaussienne est la fonction la plus simple :

$$f_I(t) = A_0 \exp \frac{(t - A_1)^2}{2\sigma_I^2} \quad T_r = A_1 \quad (4.15)$$

Les positions des maximums des résonances (In : 1,46 eV, Ta : 4,28 eV, Au : 4,9 eV, Ag : 5,18 eV et Mo : 12,1 eV) sont déterminées par l'ajustement gaussien donné dans l'équation (4.15). La valeur de K à une énergie de résonance est déterminée par $K = E_r (t_r + t_0)^2$, avec $t_0 = 0,48 \mu s$. La figure 4.13 rappelle les courbes $K(E)$ déterminées par les matrices énergie-temps simulées avec les bases ENDF/B-VI et JENDL3.2 du plomb (cf. section 4.2.1.b). Sur cette figure, on peut observer les valeurs de K obtenues à différentes énergies à partir des taux de capture en temps expérimentaux (triangles) et simulés avec JENDL3.2 (carrés) et ENDF/B-VI (disques) pour le plomb.

Nous pouvons observer dans un premier temps que la dispersion des valeurs de K obtenues par l'ajustement des résonances de capture simulées pour une base de données du plomb est supérieure à l'écart de 1,1% qui a été déterminé par l'emploi des deux méthodes vues dans la section 4.2.1. Les valeurs de K déterminées par les taux de capture expérimentaux ne permettent pas non plus de fixer la base de données du plomb décrivant le transport de manière satisfaisante.

La méthode de l'ajustement des résonances uniques de noyaux connus sur les taux de réaction temporels $\sigma_{(n,\gamma)}\Phi$ simulés et expérimentaux pour déterminer $K(E)$ semble non appropriée. Il n'est pas possible de déterminer la valeur du K du bloc de plomb avec une précision inférieure à l'écart observé entre celles de $K(E)$ trouvées par les simulations avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb.

Pour être capable de déterminer la base de données la plus appropriée pour effectuer la simulation du transport des neutrons dans le bloc de plomb, il faut nous affranchir des problèmes soulevés par les méthodes d'analyses différentes et par la comparaison de résultats ayant des erreurs trop importantes.

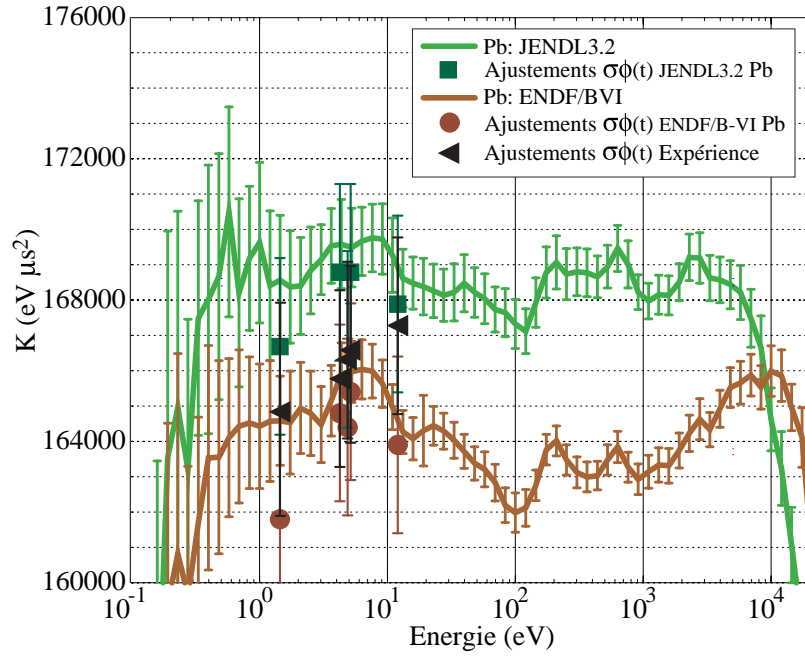


FIG. 4.13 – Superposition des courbes de $K(E)$ déduites des matrices énergie-temps simulées et des valeurs de K à différentes énergies déduites par les taux de capture expérimentaux et simulés avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI.

Si la relation liant l'énergie et le temps de ralentissement n'est pas identique entre les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI, nous devons alors nous attendre à ce que pour une même énergie de résonance d'un échantillon donné, la position moyenne du maximum temporel de la résonance ne soit pas la même. Seule l'expérience donne les bonnes valeurs des positions des résonances de capture des noyaux. La méthode employée est donc la suivante. Il est effectué le rapport des spectres expérimentaux et simulés pour une base de données du plomb fixée et un noyau donné sur une résonance. Le rapport de ces deux spectres est ensuite ajusté par une droite. La pente de la droite doit être la plus faible possible. Si les maximums des spectres sont décalés, la pente de la droite est non nulle. Le rapport des taux de réaction simulé et expérimental est réeffectué après décalage d'un canal ($0,1 \mu s$) du spectre simulé (cf. fig. 4.14).

Nous obtenons ainsi une valeur Δt à une énergie de résonance donnée entre les spectres expérimentaux et simulés avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour le plomb. Cette méthode a été appliquée aux résonances de l'indium (1,46 eV), du tantale (4,28 eV), de l'or (4,9 eV), de l'argent (5,18 eV), de l'uranium naturel (6,68 eV), du molybdène (12,1 eV), du thorium (22 eV) et du manganèse (337 eV). La figure 4.15 présente le regroupement de ces $\Delta t(E)$ entre l'expérience et les deux simulations des taux de capture sur ces échantillons avec les bases JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb. La bande grise de largeur $0,2 \mu s$ centrée à $\Delta t = 0 \mu s$ illustre l'incertitude de plus ou moins $0,1 \mu s$ sur l'origine des temps.

Nous pouvons observer que les taux de réaction sur les échantillons utilisant la base de données

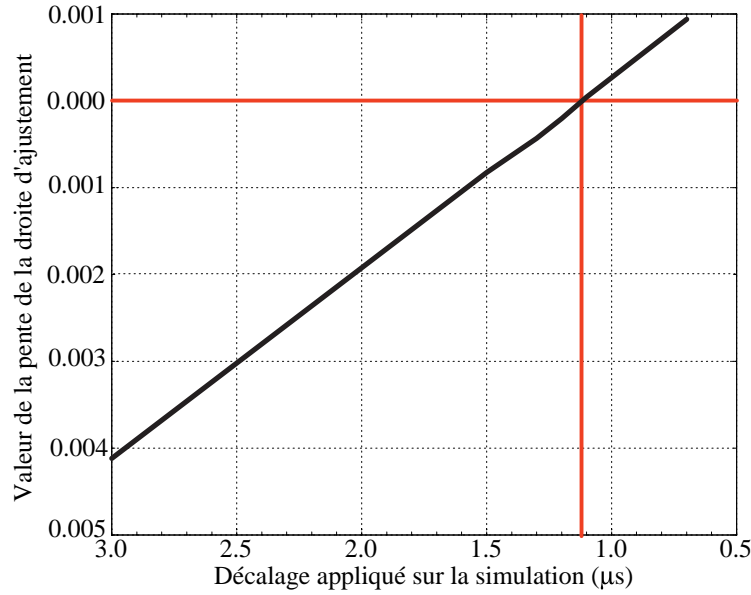


FIG. 4.14 – Exemple d'application de la méthode employée pour déterminer le décalage en microseconde entre la position de la résonance de l'or à 4,9 eV du taux de capture simulé avec la base de données JENDL3.2 du plomb et l'expérience. Le test d'arrêt s'effectue sur le passage à zéro de la pente de la droite d'ajustement

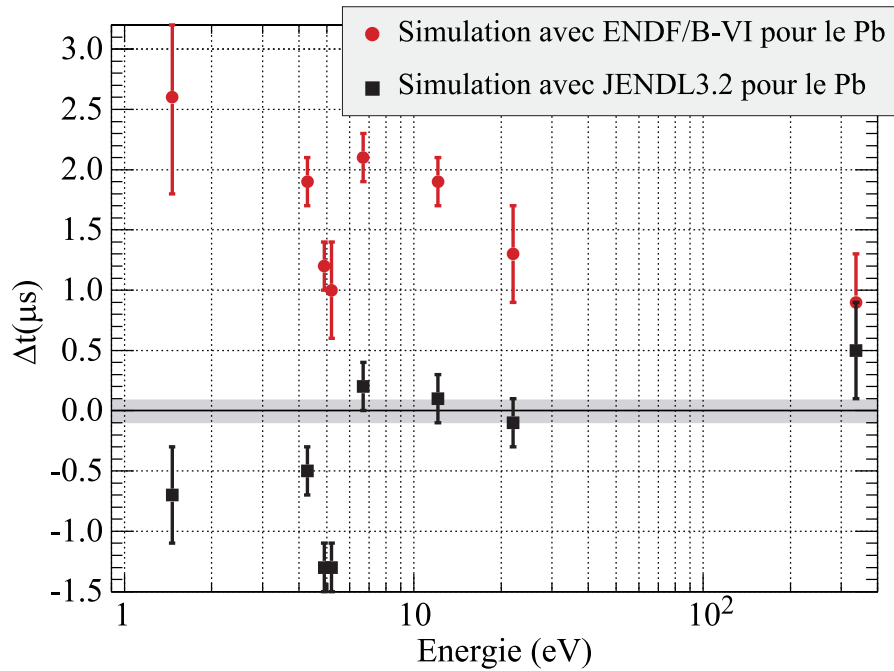


FIG. 4.15 – Ecart en temps entre les positions des résonances temporelles des $\sigma_{(n,\gamma)}\Phi(t)$ extraites des simulations effectuées avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI et des spectres expérimentaux. Taux de réaction de capture utilisés : In, Ta, Au, Ag, U_{nat} , Mo, Th, Mn.

JENDL3.2 pour le plomb présentent un décalage négatif dans l'ensemble. C'est à dire que les positions des résonances expérimentales sont observées à un temps de ralentissement légèrement plus petit que pour la simulation. Pour une même valeur de l'énergie cinétique du neutron, la valeur du paramètre K est plus petite dans l'expérience que dans la simulation. Dans le cas de l'utilisation de la base de données ENDF/B-VI du plomb, les positions des résonances dans l'expérience sont observées à un temps de ralentissement du neutron plus grand que la simulation. Par rapport à la base ENDF/B-VI, le paramètre K expérimental est plus grand. Nous pouvons observer en moyenne que les écarts sont plus faibles entre l'expérience et la simulation dans la description des taux de réaction de capture utilisant la base de données JENDL3.2.

Nous pouvons conclure que la base de données JENDL3.2 semble décrire mieux le transport et le ralentissement des neutrons dans le massif dans la région d'énergie entre 1 eV et 400 eV. Bien qu'il soit difficile de déterminer le paramètre K du bloc de plomb expérimentalement, il est possible de travailler avec une précision de l'ordre de 2% malgré la faible résolution en énergie du massif de plomb. L'ensemble des résultats expérimentaux et simulés nous permettent de donner une valeur au paramètre K auquel une erreur volontairement importante est affectée. Les valeurs retenues de ces paramètres sont les suivantes :

$$K = 168000 \pm 3000 \text{ eV} \cdot \mu s^2 \quad \text{et} \quad t_0 = 0,48 \pm 0,1 \mu s . \quad (4.16)$$

4.3 Le flux de neutrons en fonction du temps et de l'énergie

Il a été vu que l'évaluation du paramètre K n'était pas possible avec une précision inférieure à 2%. Il a surtout été constaté que les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI n'induisait pas tout à fait la même relation énergie-temps en raison de l'écart de 1,1% entre les sections efficaces de diffusion. Nous allons nous attacher ici à l'étude plus particulière du flux de neutrons en fonction du temps et de l'énergie. Après nous être assurés de certaines précautions à prendre lors du traitement des données, il sera alors possible d'analyser les taux de réaction avec trois détecteurs basés sur des réactions de natures différentes. Nous serons ainsi assurés du choix de la base de données à utiliser pour le plomb lors des études des captures neutroniques.

4.3.1 Critères d'analyse des données expérimentales et des simulations du flux de neutrons

a - Correction de temps mort

Les spectres en temps expérimentaux sont en temps "relatif". Les temps des événements se produisant sur un détecteur sont connus par rapport à l'impulsion des deutons leur ayant donné naissance.

Le temps mort est défini comme le temps pendant lequel le système d'acquisition est incapable de coder un événement car il est occupé au codage d'un autre événement. Nous avons vu (cf. section 2.1.7)

que la carte ADC que nous utilisons permet de coupler deux voies d'entrée : ainsi pendant que la première voie est occupée à traiter un événement, la deuxième reste disponible pour l'enregistrement d'un second événement. En pratique, le codage des événements s'effectue alternativement sur les deux voies.

Le temps mort peut se déterminer de la façon suivante. Lors de la lecture des données, il est possible d'effectuer la distribution des écarts en temps des événements appartenant à la même impulsion de neutrons (cf. fig.4.16).

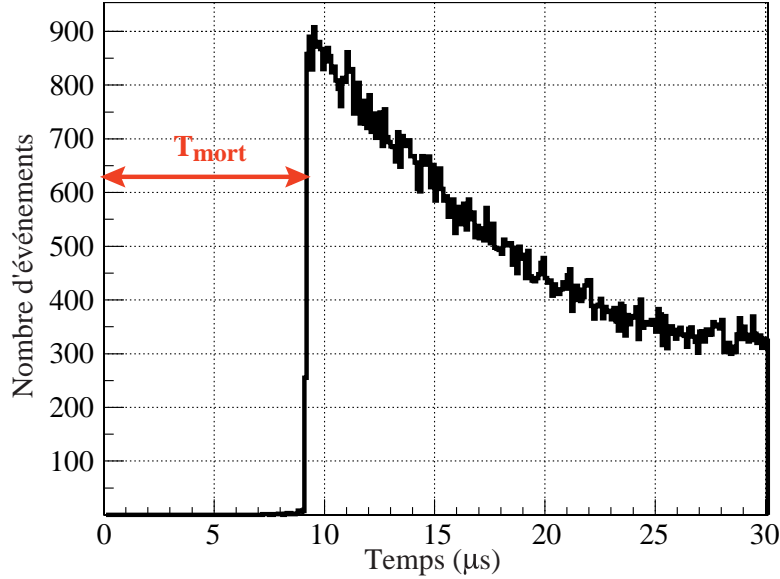


FIG. 4.16 – Exemple de distribution des décalages en temps des événements appartenant à la même impulsion de neutrons pour le compteur ^3He .

Le temps mort est donc le temps minimal pour avoir deux événements effectivement codés sur une même voie ou un couple de voies. Cette analyse simple peut être effectuée systématiquement pour tous les détecteurs. Le temps mort prend pour valeur respectivement pour les deux modes d'acquisition, quel que soit le détecteur :

$$T_{mort} = 5,8 \pm 0,1 \mu s \quad \text{Mode couplé} \quad (4.17)$$

$$T_{mort} = 9,2 \pm 0,1 \mu s \quad \text{Mode non couplé} \quad (4.18)$$

Nous pouvons alors effectuer une correction de temps mort systématique de tous les spectres de taux de réaction expérimentaux quel que soit le détecteur et son taux de comptage. Il est à noter par ailleurs que dans la plupart des mesures, l'intensité du faisceau de neutrons a été adaptée afin de ne pas dépasser le taux de comptage de 0,1 cps/impulsion pendant les dix premières microseconde après le début de l'autorisation de coder (cf. section 2.1.8). Si $\mathcal{S}_m(t)$, est le spectre enregistré en fonction du temps et N_b le nombre d'impulsions de neutrons pendant l'expérience, le spectre corrigé $\mathcal{S}_c(t)$ s'écrit :

$$\mathcal{S}_c(t) = \frac{\mathcal{S}_m(t)}{1 - \frac{\int_{t-t_{mort}}^t \mathcal{S}_m(t)}{N_b}} \quad (4.19)$$

Nous avons vérifié systématiquement que la valeur maximale de la fonction de correction de temps mort ne dépassait pas 3% sur les spectres en temps de taux de réaction quel que soit le détecteur. Nous faisons remarquer que la correction de temps mort est maximale pour les temps de ralentissement de l'ordre de la valeur du temps mort. L'énergie cinétique du neutron associée au maximum de correction est respectivement 4,3 keV ($t_{mort} = 5,8\mu s$) et 1,8 keV ($t_{mort} = 9,2\mu s$).

b - Rôle de l'origine temporelle de l'impulsion de neutrons

Un paramètre important dont il nous faut tenir compte de façon précise est l'instant auquel a lieu l'émission de neutrons par rapport au signal de déclenchement de l'impulsion de deutons à la source de GENEPI. Ce temps dépend du détecteur en raison de la nature des signaux à enregistrer qui peuvent être différents. Il varie principalement suivant le temps de montée de l'impulsion associée au détecteur. Il est fixé par le maximum du spectre en temps de la réponse de chaque détecteur pendant l'impulsion de neutrons. L'erreur sur ce temps est de 1 canal soit $0,1\mu s$ dans tous les cas. Ce temps peut aussi varier de un à deux canaux d'une expérience à l'autre mais il est possible de corriger cette légère variation grâce à une sélection systématique de la position de ce maximum à chaque expérience.

La figure 4.17 montre les 150 premiers canaux du spectre obtenu avec le compteur à gaz 3He , la méthode est la même pour les autres détecteurs. On peut observer la brutale augmentation du taux de comptage associée aux réactions. Le temps appelé origine des temps pour un spectre donné s'exprime simplement par $T_{ori} = C_{ori} \times \Delta_{c-t}$; où $\Delta_{c-t} = 0,1\mu s$ est la largeur temporelle d'un canal de l'ADC et C_{ori} la position du maximum en canaux.

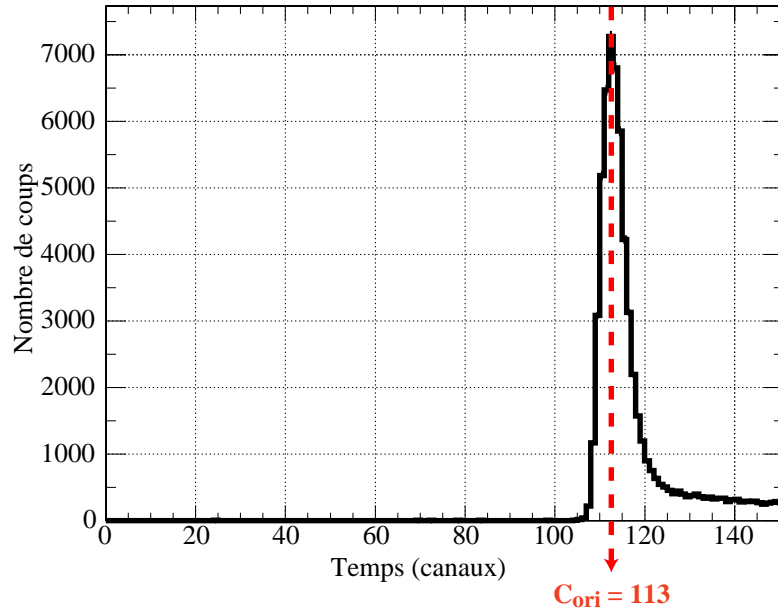


FIG. 4.17 – Exemple d'application de la détermination de l'origine des temps des neutrons pour une expérience avec le compteur à gaz 3He .

Cette valeur est très importante lors de la détermination de l'énergie cinétique des neutrons à

partir de leur temps de ralentissement. L'influence de l'erreur sur l'origine des temps ne sera en outre importante que pour les temps de ralentissement courts au même titre que l'erreur sur la valeur du paramètre t_0 du bloc de plomb (cf. eq. 2.10). Cette valeur sera utile aussi lors des comparaisons des spectres avec les simulations.

c - Données extraites de la simulation

Le taux de réaction avec le compteur à gaz ^3He a été simulé dans les deux canaux où le détecteur a été placé. Dans un cas, celui-ci est placé à la même position que celle des mesures de taux de capture (canal de droite par rapport au faisceau de deutons), il a aussi été placé à sa position symétrique (canal de gauche, position du monitoring). Comme dans toutes les autres simulations, le compteur est décrit de façon complète et précise. Le calcul du taux de réaction $^3\text{He}(n,p)t$ s'effectue dans l'espace de la zone utile du compteur comme dans l'expérience.

La procédure est la même pour le calcul du taux de fission sur la cible d' ^{233}U . La géométrie de ce détecteur est placée dans le canal de gauche en raison de l'encombrement de la canne permettant sa manipulation (cf. section 2.1.5).

Les résultats simulés, utiles pour la comparaison avec l'expérience, respectent scrupuleusement la structure des données expérimentales. Les spectres simulés des taux de réaction sur l' ^3He et l' ^{233}U sont donc exprimés en nombre de réactions par cm^2 par neutron source, en fonction du canal temps. Le calcul est effectué avec des canaux ayant la même largeur que ceux de l'expérience (100 ns). Enfin, ces taux de réaction sont calculés pour une impulsion de neutrons infiniment étroite (cf. section 4.3.1). Cette structure des données permet d'effectuer le moins de manipulations possibles des données expérimentales et simulées. La figure 4.18 donne un exemple de taux de réaction simulé en fonction du canal de temps sur la cible d' ^{233}U .

Comme dans l'étude du paramètre K (cf. section 4.2), les simulations des taux de réactions $^3\text{He}(n,p)t$ et $^{233}\text{U}(n,xf)$ ont été effectuées en utilisant les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour le plomb. Le taux de réaction pour le compteur à gaz a été calculé avec les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2 pour l'hélium 3. Le taux de fission a été simulé avec les bases ENDF/B-VI et JENDL3.2 pour l'uranium 233.

d - Convolution et normalisation des spectres simulés

Comme nous l'avons vu, les taux de réaction sont calculés pour une impulsion de neutrons sans largeur temporelle. Ceux-ci doivent être tout d'abord convolués par la forme réelle de l'impulsion de GENEPI utilisée pendant l'expérience où les spectres sont mesurés. L'exemple donné dans la figure 3.3 illustre la forme adoptée pour cette convolution.

La procédure de normalisation des spectres simulés n'est appliquée qu'au taux de réaction (n,p) sur l'hélium 3. Nous verrons pourquoi cette procédure n'est pas employée pour le spectre simulé des fissions de l' ^{233}U (cf. section 4.3.2). A ce stade, le spectre expérimental du taux réaction (n,p) est exprimé par un nombre de coups normalisé par l'intégrale du nombre de coups sur le moniteur neutron : $\frac{N_{cps}}{\int N_{mon}}(c)$.

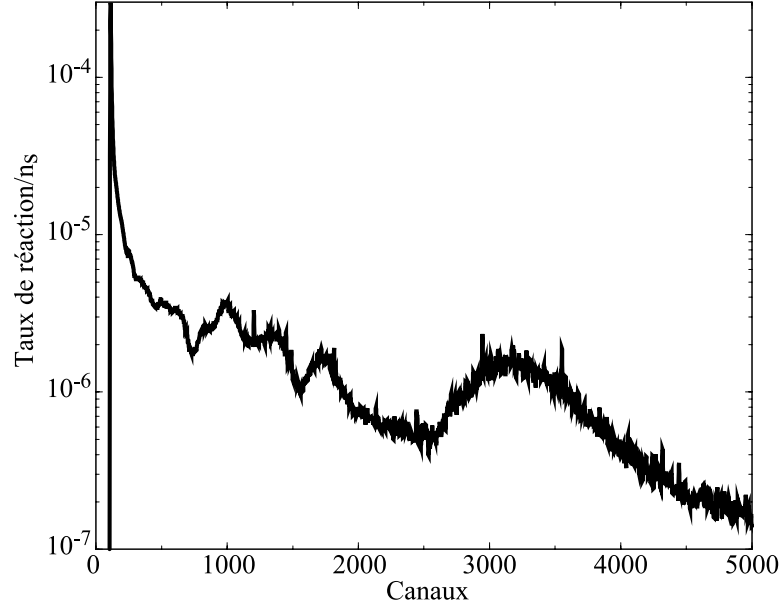


FIG. 4.18 – Exemple du taux de fission sur $l^{233}\text{U}$ simulé en fonction du canal temps.

Le moniteur neutron est dans ce cas le deuxième détecteur hélium 3 placé en position symétrique. Le taux de réaction simulé est exprimé par un nombre d'événements (n,p) par neutron source pour chaque canal : $\sigma_{(n,p)}\Phi(c)/n_s$. Le rapport des spectres expérimental et simulé est effectué. Ce rapport est ajusté par une constante dans la région des temps de ralentissement T_r comprise entre les canaux de temps 140 et 4000 (respectivement $2,7 \mu\text{s}$ et $389 \mu\text{s}$), soit la région d'énergie : $1,1 \text{ eV} < E_n < 15,6 \text{ keV}$. La valeur de la constante est le facteur par lequel le spectre simulé est multiplié.

Enfin, les spectres expérimentaux et simulés exprimés en fonction du canal temps sont convertis en fonction du temps de ralentissement des neutrons en microseconde. Le changement de variable est tel que : $f(c) \rightarrow f(t)$ avec $t = \frac{c - C_{ori}}{\Delta_{c-t}}$ où $\Delta_{c-t} = 0,1 \mu\text{s}$ et C_{ori} est la position en canaux du maximum d'intensité de signal du détecteur considéré pendant l'impulsion de neutrons (cf. section 4.3.1.b).

e - Conversion des spectres en énergie

Il a été préféré une visualisation en énergie des spectres car elle permet d'observer les taux de réaction plus simplement sur six décades d'énergie et en facilite donc l'analyse. En effet, la visualisation des spectres uniquement en fonction du temps ne permet pas d'observer aisément les différences éventuelles entre les spectres pour les temps de détection courts. Comme nous venons de le voir, ces spectres continuent d'être exprimés dans les mêmes unités.

En faisant l'hypothèse d'une relation univoque entre l'énergie d'un neutron et son temps t de détection dans le bloc de plomb, on a $E = \frac{K}{(t+t_0)^2}$. Les paramètres K et t_0 sont définis dans la section 4.2.2 tels que :

$$K = 168000 \pm 3000 \text{ eV} \cdot \mu\text{s}^2 \quad \text{et} \quad t_0 = 0,48 \pm 0,1 \mu\text{s} \quad (4.20)$$

Les spectres en énergie représentent donc le nombre de réactions ${}^3\text{He}(n,p)t$ ou ${}^{233}\text{U}(n,xf)$ normalisé de façon adéquate liées à des neutrons dont l'énergie est comprise entre E et $E+\Delta E$.

4.3.2 Description des flux de neutrons expérimentaux et simulés

Nous pouvons maintenant analyser les résultats expérimentaux et simulés pour trois détecteurs basés sur des réactions différentes mais utilisant des sections efficace connues. L'analyse peut donc s'orienter sur la description du flux de neutrons par la simulation. Lors de l'étude du paramètre K , nous avons montré des différences de l'ordre de 2,9% sur sa détermination entre les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI (cf. section 4.2) ; nous avons montré que la variation de K simulé utilisant la base de donnée JENDL3.2 est la plus compatible avec les résultats expérimentaux. Grâce aux résultats qui vont suivre, nous pourrions donc être assurés de la base de données du plomb la plus adaptée pour effectuer les simulations des taux de réaction de capture.

a - Comparaison des résultats expérimentaux et simulés du détecteur à gaz ${}^3\text{He}$

• Résultats expérimentaux en amplitude et en temps :

Les spectres d'amplitude et de temps du compteur proportionnel à gaz hélium 3 d'une expérience sont regroupés dans les figures 4.19(a) et 4.19(b).

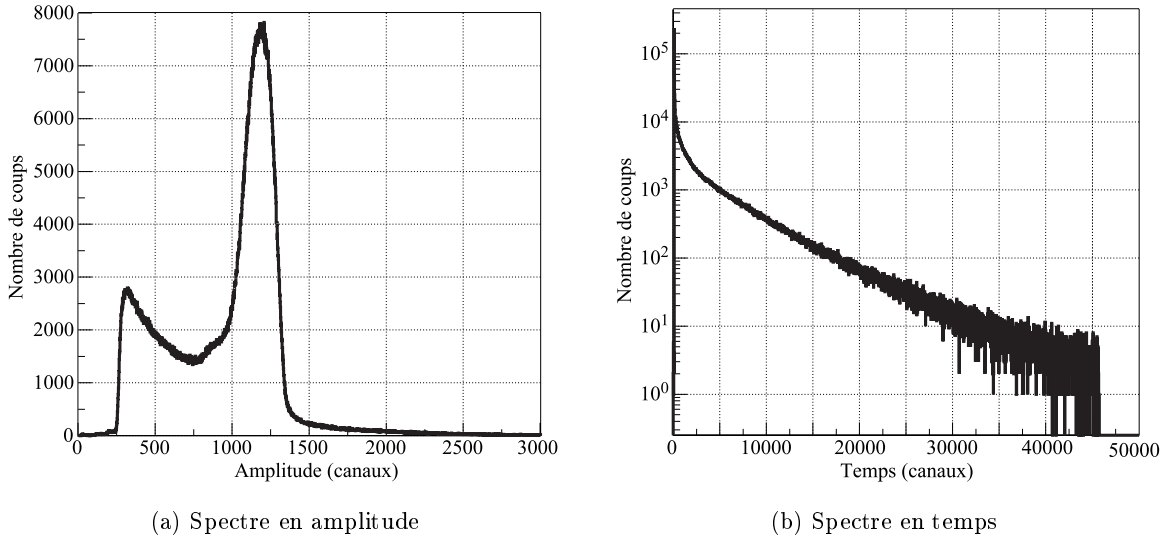


FIG. 4.19 – Réponse du compteur proportionnel à hélium 3 au spectre de neutrons de GENEPI: $P_{3\text{He}} = 70 \text{ mbars}$

Le pic au canal 1170 du spectre en amplitude correspond au dépôt complet de l'énergie du proton et du triton dans le détecteur lors de la réaction ${}^3\text{He}(n,p)t$ pour des neutrons théoriquement thermiques. Les coups visibles aux canaux plus élevés correspondent à des réactions avec des neutrons

plus énergiques. En effet, l'énergie du neutron se traduit par $E_n = E_p + E_t - Q$ (cf. section 2.1.5). Les événements se produisant aux canaux inférieurs à 1000 correspondent au dépôt partiel de l'énergie des protons et des tritons, ce sont les effets de bord. Nous pouvons observer aussi une remontée aux canaux inférieurs à 500. Les électrons Compton engendrés par diffusion des γ sur le gaz et les parois amènent une pollution du spectre dans cette région. La quasi totalité de ces événements se produisent pendant le passage de l'impulsion de neutrons (cas d'une expérience effectuée avec l'autorisation de coder pendant l'impulsion). Nous pouvons observer que la résolution du pic thermique n'est pas très bonne. Les événements de ce pic correspondent donc à des neutrons ayant des énergies allant du thermique jusqu'à quelques dizaines de keV. Mais la faible résolution du compteur utilisé ici ne pose pas de réelle difficulté puisque nous ne nous intéressons qu'à la réponse temporelle du détecteur.

Le taux de réaction en fonction du temps sur la figure 4.19(b) illustre parfaitement l'atténuation du flux de neutrons dans le bloc de plomb. Le spectre apparaît coupé au canal 45000, ce qui correspond à la période du déclenchement de GENEPI. La fin du spectre donne une lecture directe de la fréquence appliquée lors de l'expérience : ici $f = \frac{1}{45000 \times \Delta_{c-t} \times 10^{-6}} \simeq 220 \text{ Hz}$ avec $\Delta_{c-t} = 0,1 \mu s$ (cf. section 4.3.1).

• Influence des événements à grand temps de ralentissement :

Nous constatons que des événements se produisent donc à des temps de ralentissement T_r supérieurs à $4000 \mu s$. Si l'on considère que la relation énergie-temps est encore valable pour ce temps de ralentissement, ces événements se sont donc produits avec des neutrons d'énergie cinétique inférieure à $0,01 \text{ eV}$. La relation énergie-temps n'est bien évidemment pas valable pour des neutrons d'énergie inférieure à l'énergie thermique ($E_{th} = 0,025 \text{ eV}$). Ces événements proviennent en fait des neutrons sortis du bloc de plomb et qui diffusent dans les murs d'enceinte et le socle de béton puis qui reviennent dans le massif (cf. section 4.2.1). Les simulations du flux de neutrons en fonction de l'énergie et du temps montrent que le flux est non nul jusqu'à environ 10 ms après l'impulsion de neutrons. L'effet dû à ces neutrons vus à des grands temps de ralentissement n'est en réalité que peu pénalisant. Il est possible de vérifier expérimentalement la proportion des neutrons susceptibles de perturber les mesures. Pour cela, nous pouvons comparer les résultats expérimentaux des taux de réaction sur l'hélium 3 à deux fréquences différentes de GENEPI. La figure 4.20 présente les taux de réaction (n,p) expérimentaux en fonction du temps pour les fréquences 220 Hz et 440 Hz. La courbe très claire est la réponse pour la fréquence de 220 Hz dont la partie du spectre au-delà de $T_r > \frac{1}{440} \times 10^6 \simeq 2270 \mu s$ est repliée à l'origine des temps.

La figure 4.20 montre de façon indirecte l'effet des réactions intervenant sur le gaz à des temps de ralentissement importants et associables à une impulsion de neutrons antérieure. Le "repliement" du spectre mesuré à 220 Hz recalé sur le spectre mesuré à 440 Hz montre que la proportion des événements liés à des neutrons provenant d'impulsions plus anciennes est faible. Cette proportion vers $1 \mu s$ de temps de ralentissement représente environ 0,1% des coups. Au temps T_r de l'ordre de $2270 \mu s$, la proportion est de 7,5% des événements. Nous faisons remarquer que seuls les temps de détection inférieurs à $500 \mu s$ ($E > 0,68 \text{ eV}$) sont réellement utiles, la proportion de neutrons d'anciennes impulsions est dans ce contexte toujours inférieure à 2%. Nous pouvons donc conclure que la pollution éventuelle des

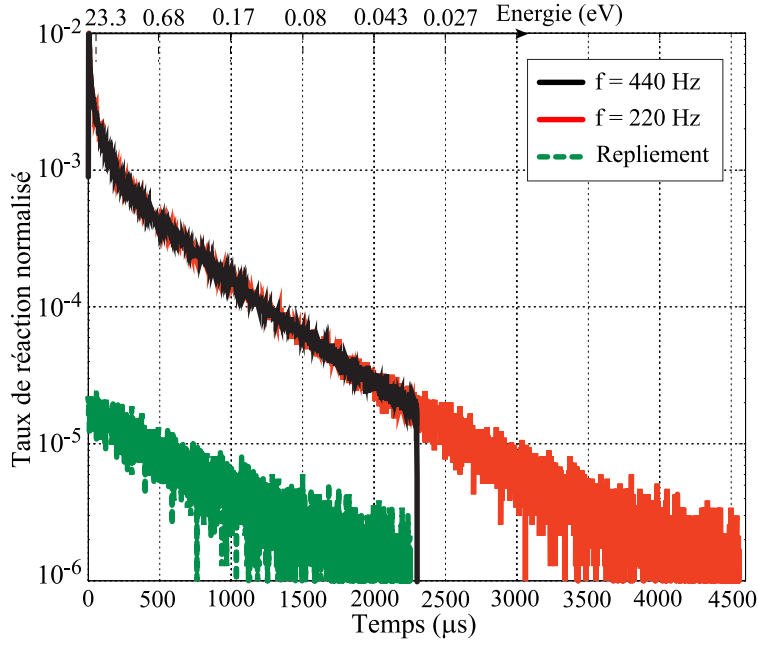


FIG. 4.20 – Taux de réaction (n,p) dans le compteur à gaz hélium 3 expérimentaux pour deux fréquences de GENEPI: $f = 440$ Hz (ligne noire), $f = 220$ Hz (ligne grise). La courbe en gris clair correspond au repliement sur l'origine des événements de temps de détection T_r supérieur à 2,27 ms.

taux de réaction par les neutrons provenant d'impulsions précédentes n'est pas pénalisante.

- **Comparaison des taux de réaction dans les canaux de mesures symétriques :**

Les mesures de taux de réaction de capture ont été effectuées dans le canal de droite par rapport à l'axe du faisceau de deutons à une trentaine de centimètres de la cible de TiT. Le compteur à gaz hélium 3 servant pour la normalisation de ces spectres a été placé dans le canal gauche en position symétrique du photomultiplicateur. Il est apparu utile d'effectuer une mesure du taux de réaction ${}^3\text{He}(n,p)t$ dans ces deux canaux afin de vérifier si le flux de neutrons était bien le même à ces deux positions. La figure 4.21 illustre les spectres de taux de réaction mesurés dans ces deux canaux de mesure. Ces spectres sont présentés en fonction de l'énergie suivant la procédure explicitée dans la section 4.3.1.

Les taux de réaction mesurés dans les canaux de mesure symétriques sont parfaitement identiques sur l'ensemble de la gamme d'énergie d'intérêt. Les flux de neutrons dans les deux canaux de mesures sont donc bien les mêmes.

- **Comparaison des taux de réaction expérimental et simulé sur l'hélium 3 :**

Nous avons montré que les taux de réaction (n,p) étaient identiques avec les trois bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2 du ${}^3\text{He}$ (cf. section 2.2.3). Les spectres simulés n'utilisent donc que la base de données ENDF/B-VI. Nous pouvons donc nous axer sur la comparaison des taux de réaction

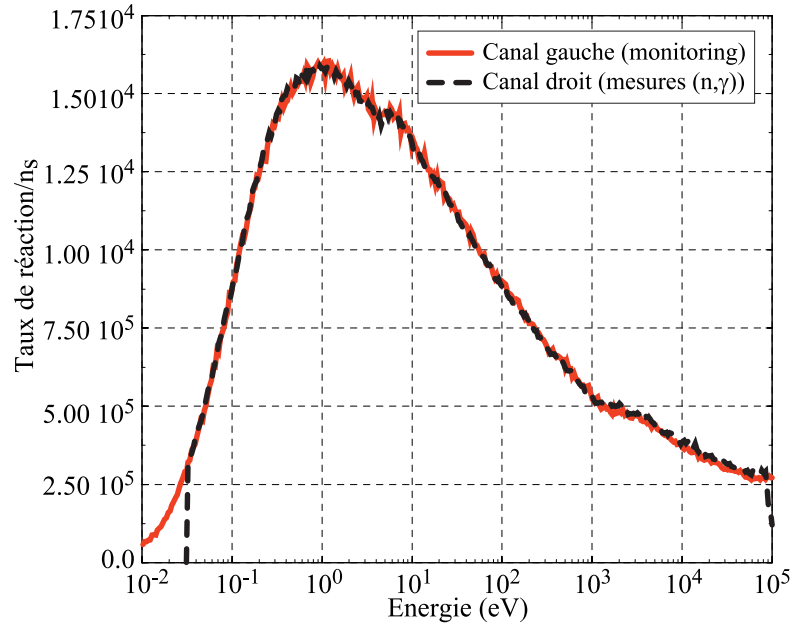


FIG. 4.21 – *Taux de réaction (n,p) mesurés avec le compteur proportionnel à gaz dans les canaux de mesures symétriques par rapport à l'axe formé par le doigt de gant de GENEPI.*

simulés avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 du plomb pour étudier les effets induits sur la description du flux de neutrons par rapport à l'expérience. La figure 4.22 présente les taux de réaction en fonction de l'énergie cinétique des neutrons pour l'expérience et les simulations utilisant les bases ENDF/B-VI et JENDL3.2 du plomb. L'expérience traitée ici est effectuée sans l'interdiction de coder pendant l'impulsion de neutrons; nous avons vérifié que la correction de temps mort était faible et qu'il y avait un très bon accord avec d'autres expériences effectuées avec l'interdiction de coder pendant l'impulsion.

Au-dessus de 100 keV, le spectre expérimental présente un taux de comptage plus important que les simulations. Dans cette région d'énergie, associée à l'impulsion de neutrons, le compteur est le siège de beaucoup d'événements dus aux raies γ et d'autres processus non directement induits par des neutrons. Ces événements ne peuvent être décrits par la simulation. Mais cette région d'énergie n'est pas exploitée avec le compteur à gaz.

En dessous de 50 keV, dans la zone où la simulation est normalisée à l'expérience, le taux de réaction expérimental est particulièrement bien décrit par la simulation utilisant la base de données JENDL3.2 du plomb. L'utilisation de ENDF/B-VI présente clairement une sous-estimation de l'ordre de 15%. En effet, il a été constaté que dans la base de données du plomb naturel extraite de ENDF/B-VI manquait l'isotope ^{204}Pb dont la proportion est de 1,4% dans le plomb naturel. Comme il a déjà été vu, les sections efficace totales du plomb extraites de JENDL3.2 et ENDF/B-VI présentent un écart relatif d'environ 1,1% (cf. section 4.2.1). Ce désaccord avec l'expérience peut aussi provenir d'une description différente de la zone des résonances non résolues par rapport à la base JENDL3.2. L'évaluation de la section efficace du plomb dans la base ENDF/B-VI, disponible par défaut pour le

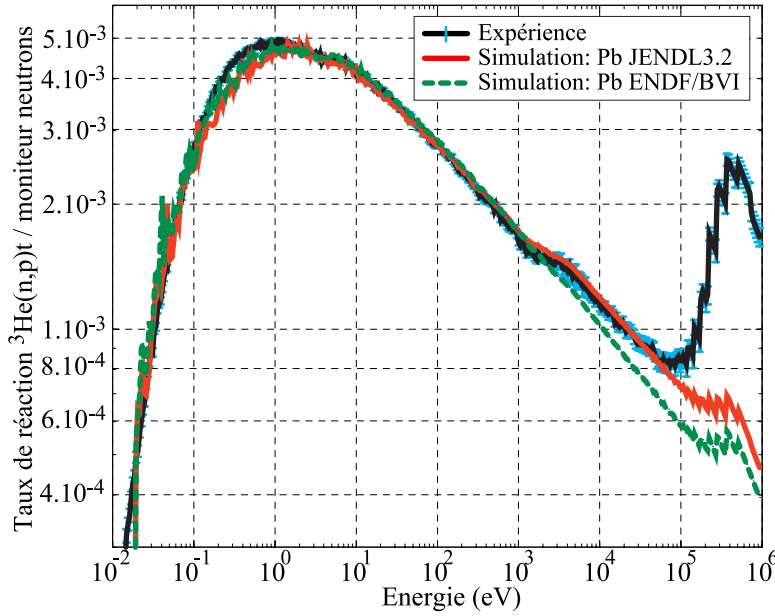


FIG. 4.22 – Taux de réaction dans le compteur à gaz hélium 3 expérimental (noir) et simulés utilisant les bases de données JENDL3.2 (gris foncé) et ENDF/B-VI (gris clair) pour décrire le plomb du bloc.

code MCNP, est déjà ancienne et bien antérieure à l'évaluation dans la base JENDL3.2. La description du flux de neutrons est la même avec les bases JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour la région d'énergie inférieure à 1 keV.

Enfin, un désaccord de l'ordre de 5% entre les simulations et l'expérience est observé autour de 0,5 eV. Il reste non expliqué. Mais ce désaccord est vraisemblablement dû à une mauvaise connaissance des taux d'impuretés dans le plomb, comme le cadmium par exemple.

b - Flux de neutrons déduit du taux de fission de l' ^{233}U

• Résultats expérimentaux en amplitude et en temps :

Les réponses en temps et en amplitude de la jonction silicium détectant les produits de fission de l' ^{233}U (cf. section 2.1.5) sont regroupées dans les figures 4.23(a) et 4.23(b).

Nous pouvons observer que la statistique de cette mesure est relativement faible malgré 21 heures d'enregistrement à 500 Hz et un courant sur la cible de TiT de 35 mA crête. Cela vient principalement des faibles dimensions de notre cible d' ^{233}U . Le taux de comptage était d'environ $1,4 \cdot 10^{-3}$ coups par impulsion de neutrons. Le spectre en amplitude présente la distribution des produits de fission de l'uranium 233 aux canaux $500 < C < 3500$. Les événements inférieurs au canal 500 et supérieurs au seuil appliqué sont entre autres des α d'émissions spontanées de l' ^{233}U .

La figure 4.23(b) présente la distribution caractéristique du taux de fission détecté en fonction du temps de ralentissement des neutrons. Les maximums observables correspondent aux maximums de résonance de la section efficace de fission de l' ^{233}U . Il est à noter que le spectre en temps est conditionné par les événements ayant des valeurs d'amplitude supérieures au canal 500. Ces coups

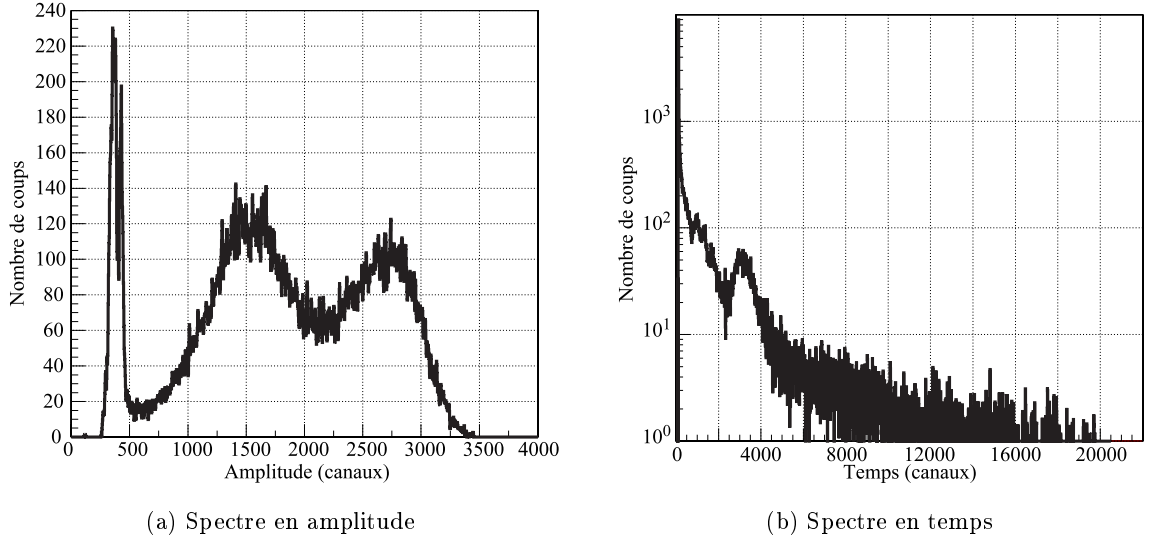


FIG. 4.23 – Réponse de la jonction silicium détectant les produits de fission de l' ^{233}U induits par la source de neutrons de GENEPI.

correspondent donc bien à des fissions de l' ^{233}U de la cible.

• Détermination expérimentale de l'efficacité de détection :

Comme nous l'avons vu (cf. section 2.1.5), l'avantage de l'utilisation d'une cible d'uranium est de permettre la détermination du flux de neutrons sans avoir à connaître au préalable l'efficacité géométrique de détection des jonctions silicium ni même la quantité exacte d'uranium qui compose la cible.

En effet, pour notre cible d'uranium 233, le nombre réel de fissions $dn_f(E)$ dans l'intervalle d'énergie dE dépend uniquement du nombre N_3 d'atomes de ^{233}U :

$$dn_f(E) = N_3 \sigma_f(E) \Phi(E) dE \quad (4.21)$$

De plus, l'activité α de désintégration de la cible par seconde dans un angle solide de 4π pour N_3 atomes de la cible s'écrit : $\mathcal{A}_\alpha = \lambda_{233} N_3$, avec $\lambda_{233} = \frac{\ln 2}{T_{\frac{1}{2}}}$. La demi-vie de l'uranium 233 a pour valeur : $T_{\frac{1}{2}} = 1,592 \times 10^5$ ans. L'équation 4.21 peut donc se réécrire sous la forme :

$$dn_f(E) = \frac{\mathcal{A}_\alpha}{\lambda_{233}} \sigma_f(E) \Phi(E) dE \quad (4.22)$$

Compte tenu de la géométrie du détecteur (cf. section 2.1.5), le nombre $dn_f^d(E)$ de fragments de fissions détectés par la jonction silicium est égal au nombre $dn_f(E)$ de fissions se produisant réellement dans la cible corrigé de l'efficacité ϵ_f de détection de la jonction :

$$dn_f^d(E) = \epsilon_f dn_f(E) \quad (4.23)$$

De la même manière, L'activité \mathcal{A}_α^d mesurée par la jonction silicium est égale au nombre d' α de désintégration $\frac{A_\alpha}{2}$ émis par la cible d'uranium 233 dans un angle solide de 2π corrigée de l'efficacité ϵ_α de détection des α de la jonction : $\mathcal{A}_\alpha^d = \epsilon_\alpha \frac{A_\alpha}{2}$.

Les mesures du nombre de fissions sous le flux de neutrons et de l'activité α sont effectuées dans des conditions géométriques rigoureusement identiques. Nous avons montré que la détection des α et des fragments de fissions s'effectue dans les mêmes conditions géométriques (cf. section 2.1.5), d'où : $\epsilon = \epsilon_f = \epsilon_\alpha$.

Le nombre de fragments de fissions $dn_f^d(E)$ détectés dans la jonction silicium peut donc s'exprimer de façon indépendante du nombre d'atomes de la cible d' ^{233}U et de l'efficacité de détection :

$$\begin{aligned} \text{avec } \epsilon N_3 &= \frac{2 \mathcal{A}_\alpha^d}{\lambda_{233}} \\ dn_f^d(E) &= \frac{2 \mathcal{A}_\alpha^d}{\lambda_{233}} \sigma_f(E) \Phi(E) dE \end{aligned} \quad (4.24)$$

Nous pouvons donc remarquer que la détermination absolue du flux de neutrons en fonction de l'énergie est possible.

L'activité α de l'échantillon d' ^{233}U est mesurée en coupant le générateur de neutrons dans les mêmes conditions géométriques que lors de la mesure du taux de fission. La valeur de l'activité détectée \mathcal{A}_α^d est la suivante :

$$\mathcal{A}_\alpha^d = 14100 \pm 120 \alpha/sec \quad (4.25)$$

Le taux de réaction peut donc être exprimé de façon absolue, c'est à dire par un nombre de réactions et par neutron source en fonction du temps ou de l'énergie.

• Comparaison des taux de fission sur l'uranium 233 expérimental et simulés :

Les sections efficaces de fission de l'uranium 233 extraites des bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI sont parfaitement identiques pour l'énergie inférieure à 60 eV. La base de données JENDL3.2 décrit la section efficace de fission avec une structure en résonances jusqu'à 150 eV. Au-delà, les bases de données présentent localement de petits écarts de l'ordre de 10%. Comme pour le taux de réaction $^3\text{He}(n,p)t$ (cf. section 4.3.2), le taux de fission sur l'uranium 233 a été simulé en utilisant pour le plomb les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI.

Le taux de réaction de fission expérimental peut s'exprimer dans les mêmes unités que les résultats des simulations, celles-ci rendent un taux de réaction par 10^{-24} et par neutron source. Le nombre de fissions détectées par la jonction pendant l'expérience peut s'exprimer en fonction du nombre de neutrons émis par la source de GENEPI. Le nombre de neutrons produits par GENEPI pendant l'expérience est tel que : $N_s = N_b \times N_{n/b}$, où N_b est le nombre d'impulsions de GENEPI pendant l'expérience et $N_{n/b}$ est le nombre de neutrons émis par la cible de TiT à chaque impulsion (cf. section 4.1.1). De l'équation (4.24), on peut écrire le taux de réaction absolu :

$$\sigma_f \Phi(E) = \frac{\lambda_{233}}{2 \mathcal{A}_\alpha^d} \frac{dn_f^d(E)}{dE} \quad (4.26)$$

Le nombre d'événements de fission N_{cps} détectés en fonction du temps par la jonction silicium avec les unités de la simulation peut alors se mettre sous la forme :

$$N_{exp}(t) = \sigma_f \Phi(t) = \frac{\ln 2}{T_{\frac{1}{2}}} \frac{1}{2 \mathcal{A}_\alpha^d} \frac{1}{N_b N_{n/b} 10^{-24}} N_{cps}(t) \quad n/10^{-24}/n_s \quad (4.27)$$

La figure 4.24 illustre la superposition du spectre expérimental exprimé dans les unités données par l'équation (4.27) et des simulations du taux de fission utilisant la base de données JENDL3.2 pour le plomb.

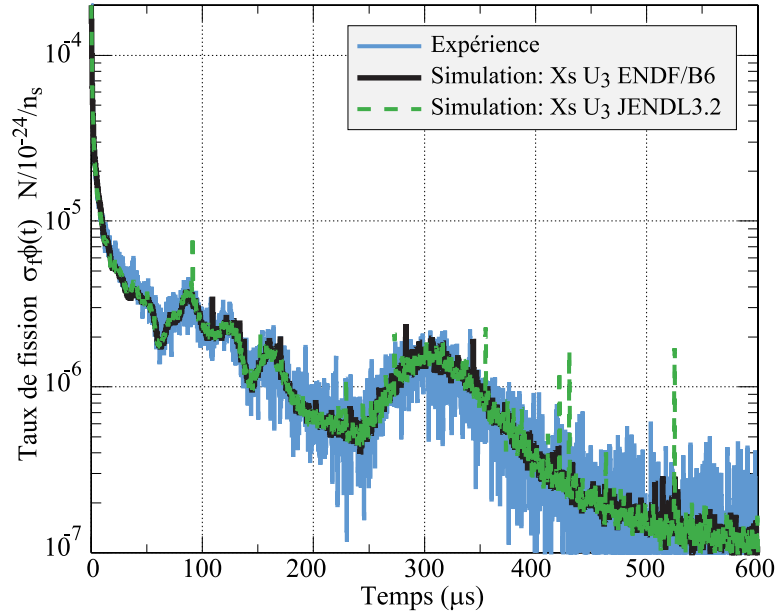


FIG. 4.24 – Comparaison des taux de fission absolus expérimental et simulés avec la base de données JENDL3.2 pour le plomb en fonction du temps.

Nous pouvons observer que la statistique de l'expérience est faible en raison du flux de neutrons relativement réduit. De plus, notre échantillon d'uranium a des dimensions réduites. Malgré tout, un bon accord existe entre la simulation et l'expérience. La simulation décrit très bien le taux de fission absolu sur l'uranium 233 sur une très large gamme de temps de ralentissement. Il n'est pas visible de différence "à première vue" entre les deux simulations utilisant des bases de données différentes pour l'uranium 233. Suivant la méthode de conversion décrite en section 4.3.1, il est préférable de présenter ces spectres en fonction de l'énergie des neutrons (cf. fig. 4.25).

Le taux de fission absolu est bien rendu par les simulations entre 0,1 eV et 100 keV d'énergie cinétique des neutrons. La simulation utilisant la base de données JENDL3.2 pour l'uranium 233 décrit mieux l'expérience entre 1 keV et 20 keV que la base de données ENDF/B-VI de l' ^{233}U . Le taux de fission associé aux résonances à 1,78 eV et 2,7 eV, bien que non résolues avec le spectromètre à temps de ralentissement, sont parfaitement décrites par la simulation. Les simulations avec les deux bases de

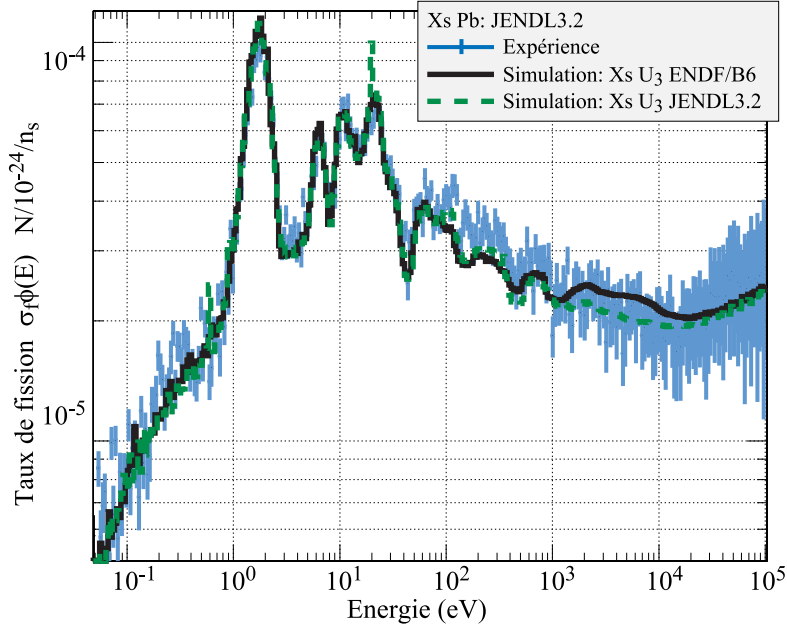


FIG. 4.25 – Comparaison des taux de fission absolus expérimental et simulés avec la base de données JENDL3.2 pour le plomb en fonction de l'énergie cinétique des neutrons.

données de l' ^{233}U rendent bien compte au-dessous de 1 keV du spectre obtenu expérimentalement. Un faible désaccord est trouvé autour de 200 eV mais le trop faible taux de comptage dans l'expérience ne permet pas de confirmer la meilleure description du taux de fission par l'une ou l'autre des deux bases de l' ^{233}U .

• Élargissement des sections efficaces

La grandeur à déterminer est le flux de neutrons $\Phi(E)$. Cependant, le flux $\Phi(E)$ ne peut être déterminé directement par le rapport du taux de fission en fonction de l'énergie par la section efficace extraite d'une base de données. Comme nous l'avons vu (cf. section 2.1.3), les propriétés de transport des neutrons dans le plomb entraînent un élargissement des résonances. Cet élargissement est clairement visible sur le spectre de la figure 4.24. La détermination expérimentale du flux de neutrons $\Phi(E)$ nécessite donc d'appliquer la dispersion en énergie de la relation énergie-temps à la section efficace de fission de l'uranium 233. Il est fait remarquer que la cible d'uranium étant suffisamment fine, les effets d'auto-absorption dans celle-ci sont négligeables.

On peut définir une fonction générique $C(E, E')$ qui illustre à une énergie E donnée, la distribution des neutrons autour de cette valeur. Cette fonction doit donc tenir compte de l'élargissement de la relation énergie-temps dans le plomb. L'expression de $C(E, E')$ illustre simplement la dispersion de l'énergie des neutrons autour de la valeur moyenne en énergie des neutrons dont l'expression théorique est donnée par l'équation 2.14: ($\frac{\Delta E}{E} = \sqrt{\frac{8}{3A}} \sqrt{1 + \frac{3AkT}{8E}}$). En pratique, $C(E, E')$ utilise la paramétrisation $\frac{\Delta E}{E}$ exploitant les résultats de la dispersion de $\frac{\Delta \sqrt{k}}{\sqrt{k}}(E)$ (cf. eq. (4.14)); nous en

rappelons ici les caractéristiques :

$$\frac{\Delta E}{E} = \begin{cases} 7,4 \cdot 10^{-3} \left(\ln \frac{E}{248,04} \right)^2 + 0,133 & \text{pour } 200 \text{ eV} \leq E < 10 \text{ keV} \\ 0,1254 \sqrt{1 + \frac{1,40}{E}} & \text{pour } 0,1 \text{ eV} < E < 200 \text{ eV} \end{cases} \quad (4.28)$$

Nous pouvons donc définir la section efficace moyennée $\bar{\sigma}_f(E)$ qui rend compte de la dispersion de la relation liant l'énergie cinétique des neutrons à leur temps de ralentissement à la position de mesure. Nous renvoyons le lecteur à [29] pour le détail du calcul. Cette section efficace moyennée est définie par :

$$\bar{\sigma}_f(E) = \int_0^{\infty} \sigma_f(E') C(E, E') \frac{dE'}{E'} \quad (4.29)$$

La figure 4.26 présente la superposition de la section efficace de fission $\sigma_f(E)$ de l'uranium 233 extraite de la base de données JENDL3.2 avec la section efficace moyennée $\bar{\sigma}_f(E)$. Cette méthode d'élargissement des sections efficaces est valable pour toutes les sections efficaces de toutes les bases de données en ayant au préalable effectué la paramétrisation du milieu ralentisseur considéré.

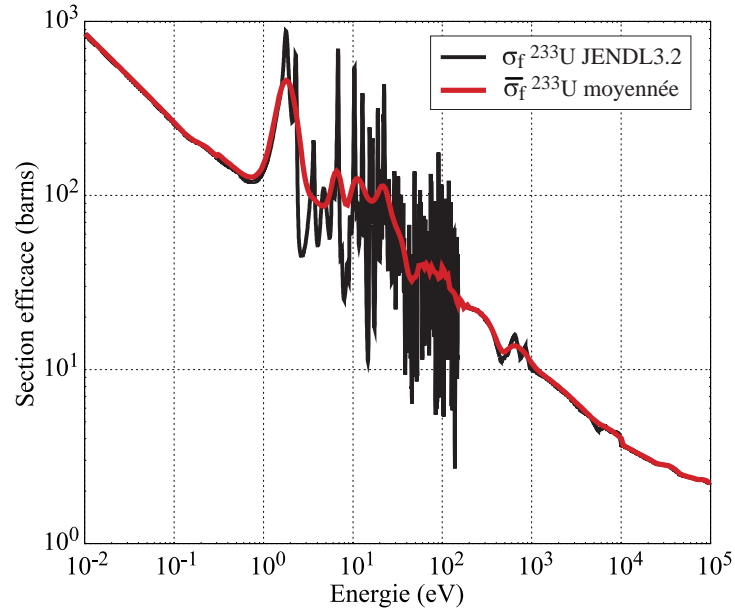


FIG. 4.26 – Superposition des sections efficaces de fission $\sigma_f(E)$ de l' ^{233}U extraite de la base de données JENDL3.2 et moyennée $\bar{\sigma}_f(E)$ en tenant compte de la dispersion de la matrice énergie-temps du massif de plomb.

• Comparaison des flux absolus de neutrons expérimental et simulés avec deux bases de données du plomb

Nous avons déterminé les taux de fission absolus expérimental et simulé, la section efficace de fission

est élargie en tenant compte des propriétés de notre milieu ralentisseur, nous pouvons donc maintenant effectuer le rapport de ces grandeurs pour obtenir les flux de neutrons expérimental et simulé. Les résultats précédents ont montré que le taux de réaction était mieux décrit par la simulation utilisant la base de données JENDL3.2 pour l'uranium 233. Il est alors possible de comparer les flux de neutrons calculés avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb à l'expérience.

Le flux de neutrons $\Phi(E)$ est obtenu de la façon suivante. Dans l'expérience réalisée avec la jonction silicium, le taux de fission absolu est de la forme suivante (cf. eq. (4.27)) :

$$N_{exp}(t) = \overline{\sigma_f \Phi(t)} \iff N_{exp}(E) = \overline{\sigma_f(E) \Phi(E)} \quad (4.30)$$

Le flux de neutrons absolu peut alors être obtenu directement en effectuant le rapport du taux de fission défini par l'équation (4.30) par la section efficace moyennée :

$$\Phi(E) = \frac{N_{exp}(E)}{\bar{\sigma}_f(E)} = \frac{\overline{\sigma_f(E) \Phi(E)}}{\bar{\sigma}_f(E)} \quad (4.31)$$

La section efficace de fission choisie comme référence est celle de la base JENDL3.2 pour l'uranium 233. La figure 4.27 présente le flux de neutrons absolu dans le canal de gauche obtenu expérimentalement et avec les simulations utilisant les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour le plomb.

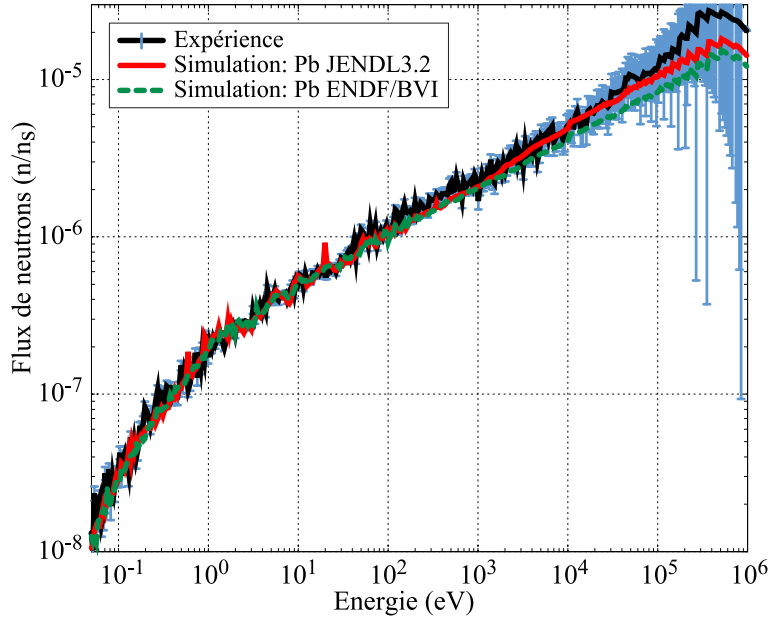


FIG. 4.27 – Flux de neutrons absolus expérimental (ligne continue) et simulés avec les bases de données JENDL3.2 (ligne grisée) et ENDF/B-VI (ligne discontinue) du plomb.

Le flux de neutrons est bien décrit par les deux bases de données du plomb au-dessous de 1 keV. Comme dans le cas des résultats des taux de réactions (n,p) sur le gaz hélium 3, nous observons que le flux de neutrons absolu entre 1 keV et 100 keV est mieux décrit avec JENDL3.2 pour le plomb qu'avec

ENDF/B-VI. Compte tenu des erreurs expérimentales importantes dues au manque de statistique au-dessus de 5 keV, il est malgré tout difficile d'affirmer que la base de données ENDF/B-VI pour le plomb est totalement non satisfaisante. La base JENDL3.2 est cependant fortement préférable. La détermination expérimentale du flux de neutrons absolu sur une très large gamme d'énergie ($0,05 \text{ eV} < E_n < 100 \text{ keV}$) permet de nous assurer que la simulation rend très bien compte du niveau de flux dans le bloc de plomb.

c - Confirmation du choix de la base de données par le taux de capture sur l'or

L'analyse des taux de réaction de capture est détaillée dans le chapitre 5. La section efficace de capture de l' ^{197}Au est bien connue dans une très large gamme d'énergie. C'est un corps de référence utilisé dans un grand nombre d'expériences. C'est pourquoi, nous avons choisi de l'intégrer dans cette partie de validation du flux de neutrons simulé. Les γ de capture sur la cible d'or sont mesurés avec le détecteur CeF_3 (cf. section 2.1.6). La figure 4.28 présente le taux de capture expérimental et simulés sur une cible d'or de $125 \mu\text{m}$ d'épaisseur avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour le plomb. La base de données de la section efficace de l'or est ENDF/B-VI ; toutes les tables présentent les mêmes valeurs de sections efficaces pour l'or. Les spectres simulés sont ajustés sur le spectre expérimental dans la zone d'énergie E_n comprise entre 1 eV et 300 eV.

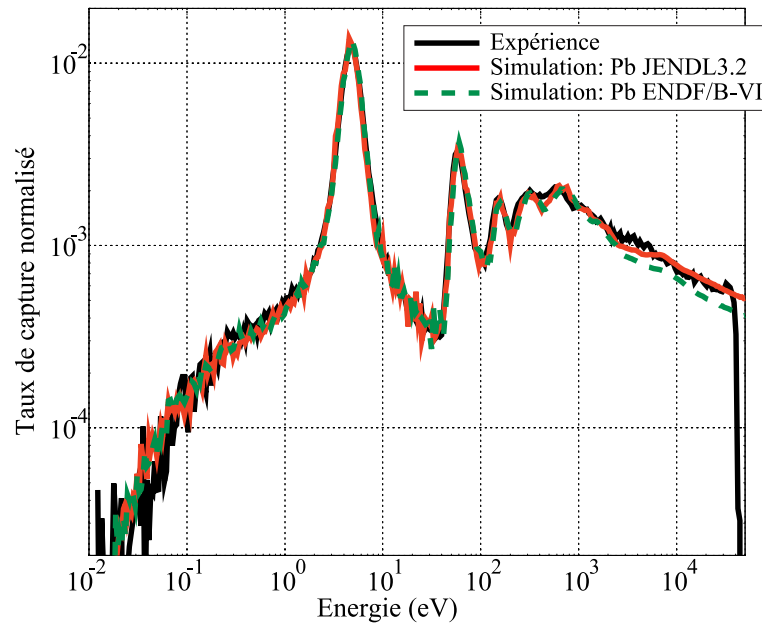


FIG. 4.28 – Taux de capture expérimental et simulés d'une cible d'or ^{197}Au de $125 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Les simulations utilisent la base de données ENDF/B-VI pour l'Au et JENDL3.2 ou ENDF/B-VI pour le plomb.

Nous pouvons observer que le taux de capture est très bien décrit par les simulations entre 0,05 eV et 1 keV. La résonance de l' ^{197}Au à 4,9 eV est parfaitement décrite par les simulations. L'auto-absorption est bien prise en compte. Comme dans les mesures de taux de réaction (n,p) sur le gaz hélium 3, ou la

mesure du taux de fission de l' ^{233}U , nous pouvons observer que le taux de réaction simulé utilisant la base de données ENDF/B-VI pour le plomb ne présente pas un bon accord avec l'expérience au-dessus de 1 keV. La simulation utilisant la base JENDL3.2 pour le plomb induit par contre une excellente description du taux de réaction de capture expérimental pour l'énergie E_n supérieure à 1 keV. Seul un petit désaccord de l'ordre de 10% existe entre 2 keV et 5 keV, cela sera discuté dans le chapitre 6. Mais ce désaccord ne peut être la cause d'une mauvaise description du flux de neutrons par la simulation ; aucun désaccord n'est observé dans les résultats des taux de réaction (n,p) sur hélium 3 et dans les taux de fission sur l'uranium 233.

4.4 Étude du flux de neutrons : conclusions

Dans ce chapitre, il a été étudié le transport et le ralentissement des neutrons dans le massif de plomb. Nous avons pu voir lors de la caractérisation du bloc de plomb (cf section 4.2) la difficulté de déterminer les paramètres fondamentaux K et t_0 du massif avec une précision supérieure à 2% valable sur toute la gamme d'énergie ($0,1 \text{ eV} < E_n < 40 \text{ keV}$). Néanmoins, nous avons pu voir que le ralentissement des neutrons était mieux décrit en utilisant la base de données JENDL3.2 pour le plomb. La comparaison des taux de réactions expérimentaux et simulés a montré une sensibilité évidente à un écart d'environ 1,1% sur la section efficace de diffusion du plomb.

De plus, le flux de neutrons dans le bloc de plomb a été étudié par des méthodes expérimentales différentes : taux de réaction (n,p) avec le détecteur à gaz hélium 3, taux de fission de l' ^{233}U mesuré avec une jonction silicium et taux de réaction de capture (n, γ) sur l' ^{197}Au détecté avec un photomultiplicateur couplé à un scintillateur CeF_3 . Ces expériences concernent toutes des phénomènes physiques utilisant des nucléides dont les sections efficaces sont bien connues. Cela nous a donc permis de découpler certains paramètres dans la simulation. L'ensemble des simulations décrivant des processus expérimentalement différents donnent la même conclusion. La base de données décrivant de façon la plus satisfaisante le flux de neutrons dans la région d'énergie entre 0,05 eV et 100 keV dans le plomb est la base de données JENDL3.2.

Les simulations qui vont être exposées lors de la validation de base de données de sections efficaces de capture utiliseront toutes la base de données JENDL3.2 pour le plomb constituant le massif.

Enfin, le flux de neutrons absolu a été étudié à haute énergie avec les mesures d'irradiation de cibles de nickel par les réactions à seuils pour $E \simeq 14 \text{ MeV}$. Il a aussi été montré la capacité de la simulation à déterminer le flux de neutrons absolu au-dessous de 100 keV. Nous rappelons que l'incertitude sur le flux de neutrons émis par la cible de TiT est de 20%. Nous n'avons pas la possibilité d'effectuer des comparaisons des flux de neutrons expérimental et simulé dans la région d'énergie allant de 100 keV à 14 MeV. Mais la simulation décrit bien l'expérience à 14 MeV et au-dessous du point d'arrivée de 100 keV. La simulation rend donc compte très correctement du transport (ou "transfert") des neutrons entre ces deux régions d'énergie ; l'incertitude sur cette fonction de transfert est de 20%.

Chapitre 5

Extraction des taux de réaction (n, γ) expérimentaux et simulés

Nous allons décrire ici pas à pas l'analyse des données expérimentales. Les échantillons d'or nous serviront de référence pour travailler et produire *in fine* le taux de capture. Nous détaillerons aussi la méthode d'extraction des données simulées et les divers traitements nécessaires pour permettre de les comparer avec l'expérience.

5.1 Les données expérimentales

Nous allons décrire pas à pas l'analyse des données expérimentales en mettant plus particulièrement l'accent sur les traitements et corrections appliqués spécifiquement aux spectres en temps mesurés avec le détecteur CeF_3 :

- L'importance de l'origine des temps de l'impulsion de neutrons
- La contribution des événements empilés dans les spectres en temps
- La normalisation des spectres en temps
- La suppression de la radioactivité et du niveau d'activation des matériaux
- Deux corrections des effets de l'échantillon sur le bruit de fond seront appliquées à la mesure de bruit de fond
- Enfin la soustraction du spectre du bruit de fond à celui avec échantillon

5.1.1 Validation de la reproductibilité des mesures

Les critères de base pour valider une mesure de taux de réaction avec le CeF_3 sont les suivants :

- Les expériences de taux de capture ont toutes été effectuées dans le canal droit, la cible est positionnée à (30 ± 1) cm de la source de production des neutrons (cf. section 2.1.6).
- La réponse en amplitude du signal de la LED connectée au scintillateur est extraite afin de contrôler les éventuelles variations de gain du photomultiplicateur pendant l'expérience mais

aussi les variations d'une expérience à l'autre. En effet, il ne doit pas y avoir de variation de gain entre la mesure avec échantillon et les mesures de bruit de fond l'encadrant temporellement. Le rejet d'une expérience est conditionné par des variations du gain de plus de 20% sur la position en amplitude de la LED (celle-ci pouvant elle même être sujette à des fluctuations).

- Pour deux mesures de bruit de fond consécutives, les réponses en amplitude et en temps normalisées du détecteur CeF_3 sont comparées afin de déterminer s'il y a pu avoir eu une variation éventuelle du gain pendant l'expérience avec échantillon (cf. section 2.1.8).
- Les taux de comptage des deux moniteurs (détecteur à gaz hélium 3 et détecteur (α -p)) sont comparés d'une expérience à l'autre. Cela permet d'isoler les mesures présentant des anomalies ou des instabilités (variation d'intensité du faisceau, problèmes sur l'acquisition). La cohérence des taux de comptage des moniteurs entre eux et par rapport à l'intensité du faisceau est aussi vérifiée.

Toutes ces vérifications sont effectuées dans un premier temps et permettent de rejeter les expériences ne répondant pas à ces critères.

5.1.2 Origine des temps de l'impulsion de neutrons

Dans la section 4.3.1, la procédure appliquée pour déterminer la position de l'origine des temps a été étudiée. Cette origine est le temps entre le signal de déclenchement d'extraction des deutons dans la source de GENEPI et le maximum de l'impulsion associé au passage des neutrons dans le détecteur considéré.

Comme nous l'avons déjà vu dans la section 2.1.8, pour diminuer la correction de temps mort du détecteur CeF_3 et pour maximiser l'intensité de l'impulsion de neutrons, il est appliqué un veto sur les événements appartenant à l'impulsion de neutrons. Le début de l'autorisation de codage des signaux venant du photomultiplicateur intervient immédiatement après la fin de l'impulsion de neutrons. La figure 5.1 illustre les réponses temporelles sur 90 canaux encadrant l'impulsion de neutrons de deux expériences de taux de capture avec et sans le veto.

L'expérience effectuée sans veto n'est que de courte durée, la correction de temps mort sur les 60 canaux après le maximum de l'impulsion de neutrons est importante; le taux d'empilement est également important. Cette mesure n'est exploitée que pour déterminer la position du maximum de l'impulsion.

La détermination de la position du maximum de l'impulsion est effectuée par cette mesure sans veto avant chaque expérience (avec ou sans échantillon). La méthode de détermination est la même que celle employée lors de la détermination de l'origine des temps des spectres de taux de réaction (n,p) sur hélium 3 ou du taux de fission de l'uranium 233 (cf. section 4.3.1).

Pour chaque expérience effectuée avec le détecteur CeF_3 , l'origine des temps est alors connue avec une erreur de un canal ($0,1 \mu\text{s}$).

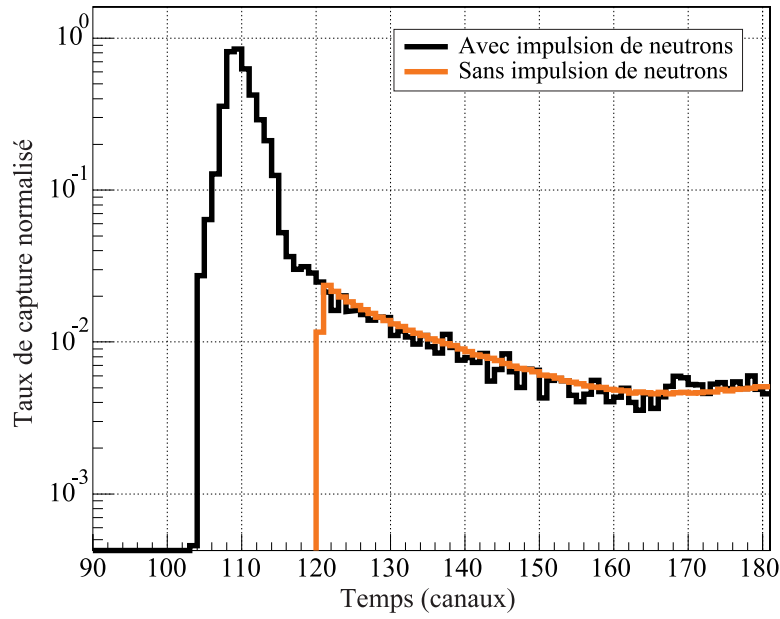


FIG. 5.1 – *Superposition de la réponse temporelle enregistrée avec le photomultiplicateur pour deux expériences avec et sans veto de l'impulsion de neutrons.*

5.1.3 Spectre en amplitude et en temps du détecteur CeF_3

Les figures 5.2(a) et 5.2(b) présentent les réponses en amplitude et en temps d'une expérience effectuée avec un échantillon d' ^{197}Au de 4 cm^2 et de $500\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur placé devant le scintillateur. Les échantillons d'or vont être très utiles pour décrire pas à pas toute la méthodologie d'analyse des taux de réaction de capture. Les applications présentées dans le chapitre 6 auront suivi les traitements décrits dans le présent chapitre.

La réponse en amplitude illustre le cumul des événements en amplitude enregistrés avec le photomultiplicateur. Le pic centré au canal 3800 est la réponse du signal à la LED. Le niveau de cette impulsion a été volontairement choisi élevé pour ne pas perturber les événements associés aux γ venant de l'échantillon ou du bruit de fond. Ces événements associés peuvent être très facilement supprimés dans le spectre en temps. La distribution des événements pour les canaux inférieurs à 3500 correspond aux événements associés aux γ de capture sur l'échantillon d'or auxquels s'ajoutent les γ du bruit de fond.

La réponse temporelle est présentée volontairement pour les canaux inférieurs à 3000 pour mieux visualiser les positions des résonances de l'échantillon dans le spectre en temps. L'importance des événements se produisant à grand temps de ralentissement sera abordée dans la section 5.1.7.

La distribution des événements de capture observable figure 5.2(b) présente des maximums de réaction. Ceux-ci sont caractéristiques de l'échantillon d'or. Mais, tous ces maximums peuvent ne pas correspondre à des résonances de capture de l'échantillon considéré; ils peuvent provenir de noyaux présents dans l'environnement de la cible. La distribution centrée au canal $c = 1960$ est associée à la résonance de l'or 197 à 4,9 eV. En effet, nous pouvons appliquer la relation énergie-temps (cf. eq. 4.20).

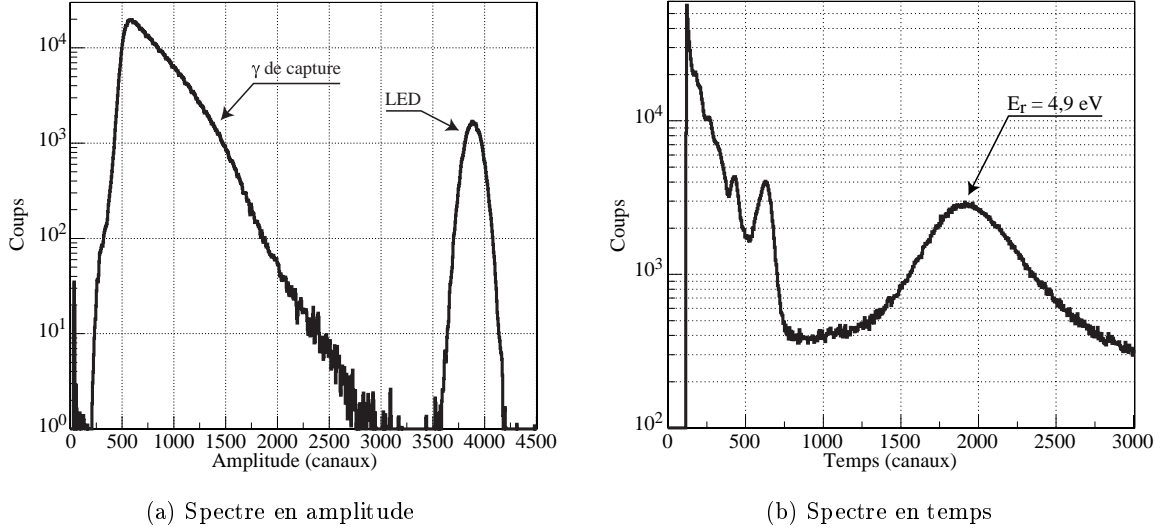


FIG. 5.2 – Réponse du détecteur CeF_3 pourvu d'une cible d' ^{197}Au placée devant le scintillateur.

L'origine des temps d'émission des neutrons est ici au canal $c_{ori} = 108$. La largeur temporelle d'un canal est $\Delta_{c-t} = 0,1 \mu s$. Il est donc possible de calculer rapidement la valeur en énergie du neutron sur les maximums observés sur les spectres en temps. D'où :

$$E_r = \frac{K}{((c - c_{ori}) \times \Delta_{c-t} + t_0)^2} \implies \text{par ex. : } E_r(c = 1960) \simeq 4,9 \text{ eV} \quad (5.1)$$

Nous pouvons observer aussi que la résolution en temps de cette résonance dans le massif de plomb est faible. La largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 22%. Le nombre de réactions diminue très rapidement à mesure que les temps de détection sont de plus en plus longs. Le flux de neutrons dans le bloc de plomb décroît en fait très rapidement avec le temps de ralentissement (cf. fig 4.27).

5.1.4 La contribution des empilements dans les spectres

a - Identification des empilements

Comme nous venons de le voir, le taux de réaction augmente de façon importante pour les temps de détection courts. Nous pouvons donc nous attendre à une augmentation du taux d'empilement sur notre détecteur. Dans la section 2.1.7, nous avons vu qu'un bit attaché à l'événement était réservé à la détection d'un empilement. En effet, le codeur met le bit d'empilement à la valeur 1 si une deuxième impulsion logique arrive pendant que le codeur est en train de détecter la crête du signal analogue [44]. De plus les événements codés n'auront pas l'amplitude associée au premier signal logique. En effet, l'amplitude délivrée par le convertisseur charge tension est perturbée par l'arrivée de cette deuxième impulsion. Les figures 5.3(a) et 5.3(b) présentent les spectres en amplitude et en temps de la réponse du détecteur aux événements sans condition sur le bit d'empilement (tous les événements) et de la réponse en amplitude des événements dont le bit d'empilement est à 1.

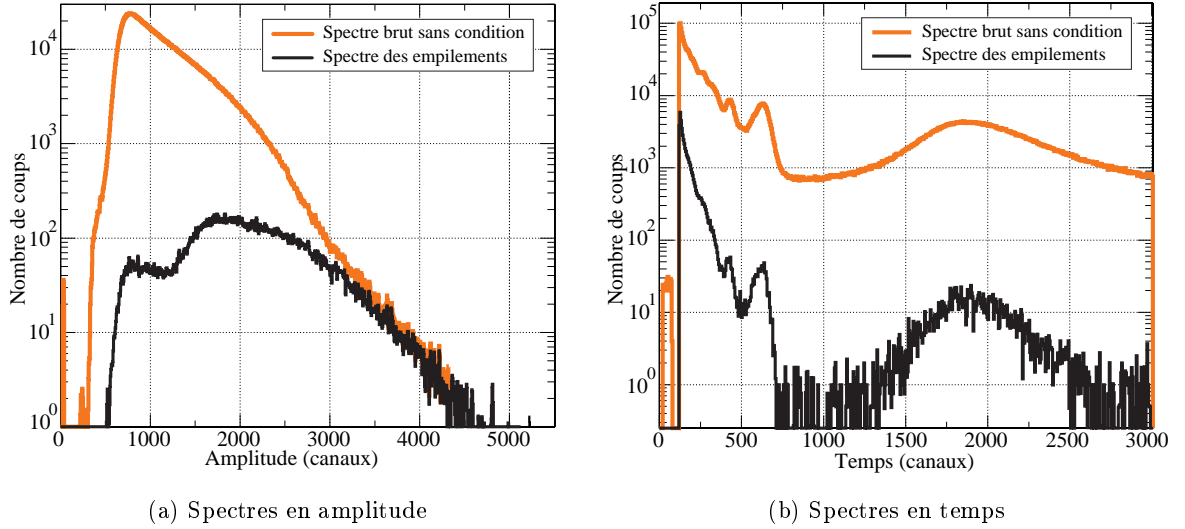


FIG. 5.3 – Réponse du détecteur CeF_3 avec un échantillon d'or de $1250 \mu m$ pour les événements dont le bit d'empilement est à la valeur 1 superposée à celle sans condition sur l'empilement.

Nous pouvons observer qu'au-dessus du canal 3000, la réponse en amplitude ne contient que des événements empilés. La probabilité d'avoir des empilements est directement reliée aux taux de comptage du détecteur, nous observons effectivement dans la réponse en temps l'augmentation du taux d'empilement pour les faibles temps de détection et un peu dans la résonance (cf. fig. 5.3(b)). La proportion d'empilements est de l'ordre de 6% vers le canal 150 (le temps de ralentissement est de $4,1 \mu s$) et dans la résonance de l'or à $4,9 \text{ eV}$ positionnée au canal 1800, la proportion n'est plus que de 0,4%.

b - Correction des empilements

Le spectre des événements empilés est constitué d'événements ayant tous passé le seuil du discriminateur sur la voie rapide. Il s'agit donc de vrais événements physiques dont nous devons effectivement tenir compte. Leur amplitude associée est certes détériorée, mais les spectres en temps sont eux construits par l'accumulation des impulsions logiques de la voie rapide se produisant au temps de détection t_r après l'impulsion de neutrons. Le spectre en temps "réel" est donc la somme du spectre sans condition sur l'empilement et du spectre dont le bit d'empilement prend la valeur 1. D'autre part, afin de tenir compte des événements qui se sont superposés à ceux dont le bit d'empilement était à 1, nous rajoutons ces coups dans l'intervalle de temps où a lieu l'empilement et qui correspond au temps de montée du signal analogique c'est à dire 400 ns. Pour chaque signal empilé, on ajoute donc sur le spectre en temps un coup distribué statistiquement sur 400 ns en suivant la distribution des événements sans condition d'empilement. On obtient donc ainsi un spectre corrigé. Cette méthode est appliquée aussi bien aux spectres en temps mesurés avec échantillon qu'aux mesures de bruit de fond. La figure 5.4 présente la superposition du taux de réaction total corrigé des empilements avec le taux

de réaction non corrigé pour un échantillon d'or de $1250\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur. Ces spectres sont par ailleurs corrigés du temps mort suivant la procédure décrite dans la section 4.3.1.

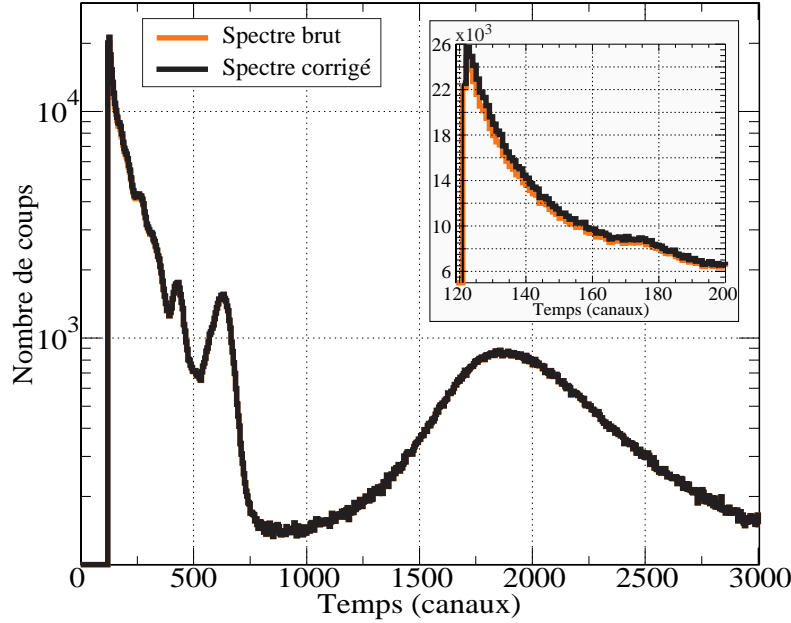


FIG. 5.4 – *Spectres expérimentaux des taux de réaction de la cible d'or de $1250\text{ }\mu\text{m}$ en fonction du temps sans condition sur l'empilement et corrigé des empilements. L'encart présente ces spectres entre les canaux 120 et 220.*

Nous pouvons observer clairement que le taux d'empilement est négligeable au-dessus du canal 250. Dans le cas de cet échantillon d'or, la correction est de 5% au maximum sur les 100 premiers canaux après le début de l'autorisation de coder, cette plage correspond aux temps de ralentissement inférieurs à $11\text{ }\mu\text{s}$ (soit au-dessus de $1,3\text{ keV}$).

5.1.5 Identification du bruit de fond

Un point très important de notre analyse est la mesure du bruit de fond γ dans le bloc de plomb. Ce niveau peut être très défavorisant pour les échantillons ayant une section efficace de capture relativement faible. Par contre, dans le cas de l'or, la section efficace de capture est importante dans la région d'énergie entre $0,1\text{ eV}$ et 40 keV étudiée ici (cf. annexe A.2(a)). La figure 5.5 présente la superposition des spectres en temps expérimentaux effectués avec une cible d' ^{197}Au et sans. Ces spectres ont été normalisés à un même nombre de neutrons source suivant la procédure décrite à la section 5.1.7. Ils sont présentés en fonction du temps en microseconde.

Nous pouvons observer que le niveau de bruit de fond est loin d'être négligeable par rapport au niveau du spectre mesuré avec un échantillon. Dans les résonances de l'or le rapport signal sur bruit est grand, dans la résonance à $t \simeq 180\text{ }\mu\text{s}$ celui-ci est de l'ordre de 20. Au temps de détection inférieur à $10\text{ }\mu\text{s}$ ($E_n > 1,5\text{ keV}$), le bruit de fond γ devient très important, le rapport signal sur bruit est de l'ordre de deux pour cet échantillon d'or ^{197}Au de $125\text{ }\mu\text{m}$. Nous pouvons observer que le bruit de fond

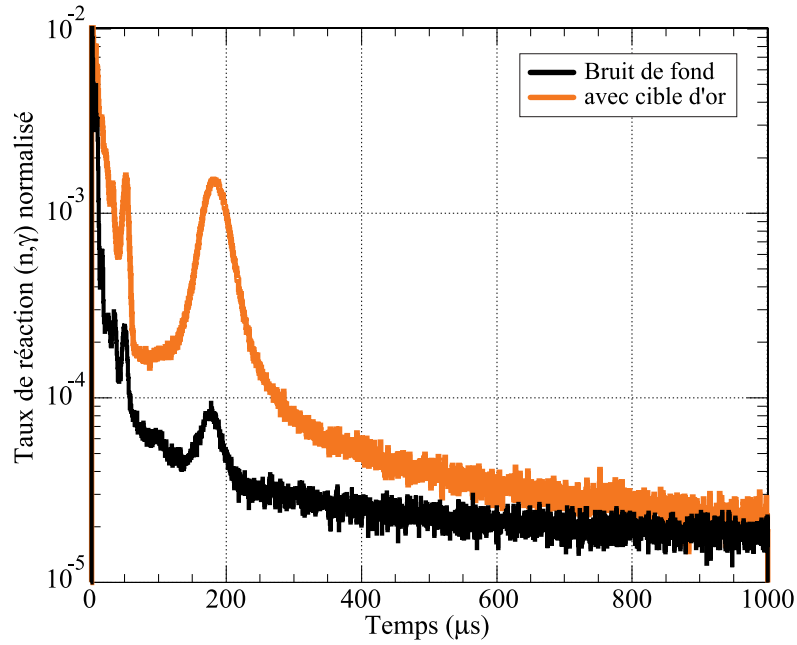


FIG. 5.5 – Spectre en temps d’une expérience réalisée avec un échantillon d’or et de l’expérience de bruit de fond associée.

décroît à mesure que le temps de détection augmente. Au-dessus de $1000 \mu\text{s}$ de temps de détection, le bruit de fond domine complètement le taux de réaction mesuré avec l’échantillon. En effet, bien que la section efficace de capture $\sigma_{Au(n,\gamma)}$ augmente très vite au-dessous de 1 eV , les sections efficaces des autres matériaux et notamment du plomb dominant.

Le détecteur CeF_3 étant placé directement dans le flux de neutrons, il doit donc être sujet au même titre que le plomb à des réactions (n,γ) . De même, les impuretés du plomb constituent autant de sources potentielles émettrices de γ de capture qu’il y a de matériaux mis en jeu dans le système. Le nombre de noyaux contribuant au bruit de fond peut donc être important. A priori, seul l’environnement proche du scintillateur va contribuer aux γ du bruit de fond compte tenu de l’absorption des γ dans le plomb. En raison de la complexité du bruit de fond, nous avons choisi d’en effectuer la reconstruction pour nous permettre de bien le comprendre.

5.1.6 La reconstruction du bruit de fond

Pour mieux connaître les divers matériaux sur lesquels les réactions (n,γ) ont lieu et qui donnent la structure en résonances observée figure 5.5, le bruit de fond a été reconstruit. L’ensemble des noyaux présents dans l’environnement proche du scintillateur susceptibles de contribuer au bruit de fond ont été identifiés. Par exemple, le maximum observé à $t_r = 178 \mu\text{s}$ correspond à la résonance de l’argent à $5,2 \text{ eV}$ (cf. annexe A.2(b)).

Pour effectuer cette reconstruction, un flux de neutron $\Phi(E,t)$ dans le bloc de plomb en fonction du temps et de l’énergie a été simulé (cf. fig. 4.6). Grâce à cette matrice $\Phi(E,t)$, il est possible de construire un taux de capture à épaisseur nulle en fonction du temps pour tous les noyaux présents

dans le détecteur CeF_3 et son environnement. Les sections efficaces de capture en énergie sont extraites des bases de données. Les taux de capture ainsi calculés ne tiennent pas compte de l'auto-absorption des γ dans la cible. L'hypothèse d'un effet d'auto-absorption négligeable des γ du bruit de fond est justifié par le volume relativement faible de matière mis en jeu. La procédure peut être schématisée ainsi :

$$\sigma_{(n,\gamma)}(E) \text{ (tables)} \implies \Phi(E,t) \text{ (simulation)} \implies \sigma_{(n,\gamma)}\Phi(t) \text{ (épaisseur nulle)} \quad (5.2)$$

Il est alors aisé de manipuler les “pseudo” taux de réaction de capture pour l'ensemble des matériaux identifiés appartenant au bruit de fond, de les pondérer et de les sommer afin de reproduire le bruit de fond expérimental. La figure 5.6 présente la superposition des bruits de fond expérimental et reconstruit.

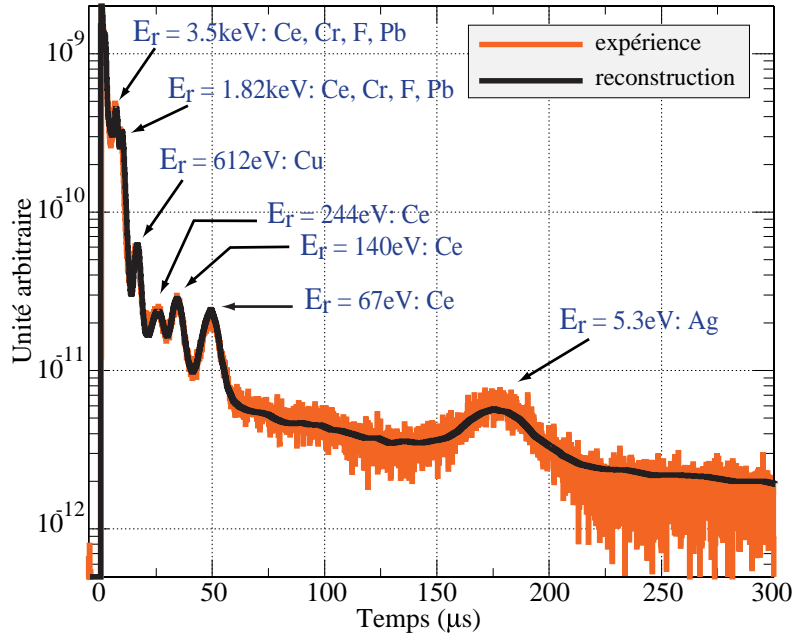


FIG. 5.6 – Superposition des bruits de fond expérimental et reconstruit par la somme pondérée des taux de réaction calculés sur les matériaux constituant le bruit de fond à partir des bases de données.

Nous pouvons observer que toutes les résonances du bruit de fond ont été identifiées par un matériau présent dans l'environnement proche du scintillateur. Le tableau 5.1 présente les principaux éléments constituant le bruit de fond ainsi que les proportions utilisées lors de la reconstruction et la localisation géographique des éléments dans lesquels ils sont présents.

Les noyaux d'argent ne contribuent au bruit de fond que par la résonance à $t_r = 178\mu s$. Le plomb, le chrome, le fluor et le cérium sont les principaux éléments produisant la remontée du bruit de fond en-dessous de $12\mu s$ ainsi que les résonances à $6,6\mu s$ et $9,3\mu s$. Le plomb, le chrome et le cérium sont aussi importants au-dessus de $70\mu s$, ce sont eux qui contribuent au fond de γ aux grands temps de détection. Le cuivre est à l'origine de l'existence de la résonance à $16,3\mu s$ dans le bruit de fond.

Enfin le cérium est la cause des résonances à $26\mu s$, $34,5\mu s$ et $50\mu s$ de temps de détection. Ces

Élément naturel	Proportion atomique (%)	localisation
Plomb	40,9	porte-cible et étui de plomb
Argent	$1,61 \cdot 10^{-3}$	impureté du plomb
Cobalt	$3,35 \cdot 10^{-3}$	impureté du plomb
Cuivre	0,234	photomultiplicateur et impureté du plomb
Chrome	6,72	photomultiplicateur et impuretés du plomb
Fer	0,335	photomultiplicateur
Aluminium	1,67	porte-cible
Cérium	11,7	scintillateur
Fluor	35,2	scintillateur
Praséodyme	$1,67 \cdot 10^{-2}$	impureté du cérium

TAB. 5.1 – *Éléments majeurs intervenant dans la reconstruction du bruit de fond.*

maximums proviennent de la contribution de l'isotope 136 du cérium. La proportion de cet isotope dans le cérium naturel est seulement de 0,19%, mais les valeurs des résonances sont toutes supérieures à 200 barns. L'influence de ces résonances sera donc considérable. Seuls les isotopes 140 à 144 du cérium sont disponibles dans les différentes bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2, JEF2.2, BROND-2.2 et CENDL-2. Les isotopes 136 et 138 sont donc indisponibles au format ENDF nécessaire pour le code de calcul MCNP. Les courbes des sections efficaces de capture de ces deux isotopes ont donc été extraites de J. CHANG [48] dans un simple format ASCII (cf. fig. A.1). Les sections efficaces de ces deux isotopes ne sont exploitables dans notre cas que pour la reconstruction du bruit de fond. Ces deux isotopes du cérium ne peuvent être utilisés dans les simulations avec MCNP car il ne semble pas en exister d'évaluation complète au format ENDF. Il manquera donc ces deux isotopes dans les simulations du détecteur CeF_3 .

5.1.7 Procédure expérimentale de construction du spectre de taux de capture

a - La normalisation

Les spectres en temps de l'échantillon et du bruit de fond peuvent maintenant être normalisés. Comme nous l'avons vu, les mesures des taux de réaction sont effectuées en plaçant l'étui de plomb contenant le détecteur CeF_3 et l'échantillon toujours à la même place dans le canal de droite dans le plan horizontal contenant l'axe du doigt de gant. Dans le canal de gauche est placé le compteur à gaz hélium 3. Celui-ci est utilisé ici pour le contrôle de l'expérience.

Les spectres en temps mesurés sont intégrés et le comptage du moniteur ^3He utilisé pour la normalisation des spectres en temps mesurés avec le photomultiplicateur. Les spectres obtenus seront nommés taux de réaction normalisés.

b - La radioactivité et l'activation des matériaux

Sous le flux de neutrons de GENEPI, certains matériaux peuvent être activés. Le nombre de matériaux intervenant dans l'expérience est relativement important. Les durées de vie de certains noyaux peuvent être très différentes les uns des autres. Par exemple, la capture d'un neutron par le plomb 208 dont l'abondance est de 52,4% dans le plomb naturel produit le plomb 209 de demi-vie 3,253 heures. Les demi-vies des isotopes ^{108}Ag et ^{110}Ag suite aux captures sur l'argent naturel sont respectivement de 2,37 minutes et 24,6 secondes. Certains des échantillons sont aussi susceptibles de s'activer avec des durées de vie relativement courtes sous le flux de neutrons; c'est le cas par exemple de l'indium, du molybdène ou du technétium. Certains échantillons peuvent aussi être eux-mêmes radioactifs comme c'est le cas des échantillons de ^{232}Th , uranium naturel ou de ^{99}Tc . Tous ces γ de désintégration sont détectés par le photomultiplicateur de la même façon que les γ de la cascade suite aux captures. Mais dans tous les cas, les durées de vie mis en jeu sont toutes très supérieures au temps entre deux impulsions de GENEPI (au minimum les durées de vie sont 5000 fois plus grandes que le temps entre deux impulsions).

Dans la démarche d'analyse des données choisie, la même méthode suivante est appliquée à tous les types d'échantillon ainsi qu'aux mesures de bruit de fond.

Les niveaux d'activation se présentent sous forme d'un spectre plat que l'on peut observer au-dessus des temps de détection t_r de $2000\text{ }\mu\text{s}$ sur la figure 5.7. Si la relation énergie-temps était valable pour un tel temps de ralentissement, l'énergie des neutrons serait de 0,04 eV. Compte tenu de la dispersion de la relation énergie-temps du massif de plomb, tous les neutrons sont thermiques au-delà de 2 ms.

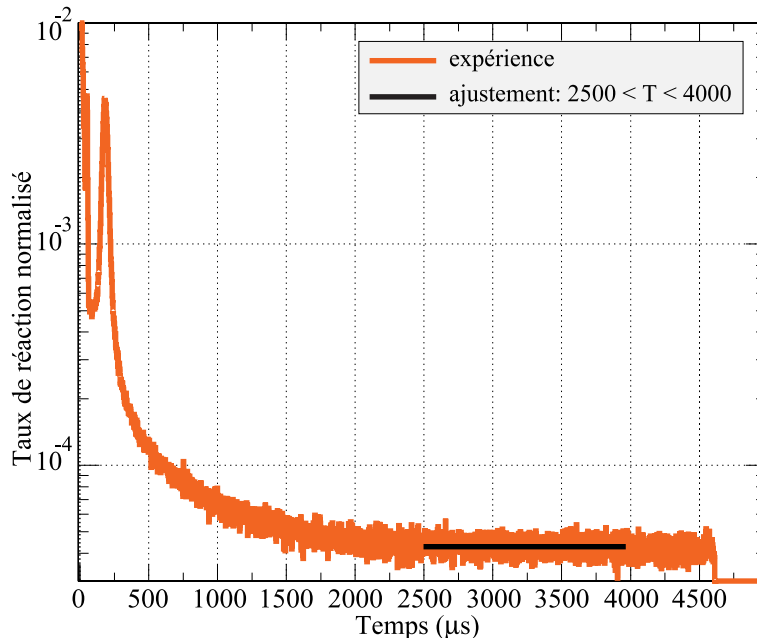


FIG. 5.7 – Spectre en temps de la mesure avec un échantillon d'or de $125\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur, zone temporelle sur laquelle la détermination de la constante d'activation est effectuée.

L'étude du taux de réaction (n,p) sur hélium 3 a montré que les spectres étaient pollués dans la

région des grands temps par une faible proportion d'événements associés à des impulsions de neutrons précédentes. Ce niveau est de l'ordre de 7,5% (cf. section 4.3.2). Dans le cas du photomultiplicateur, les captures de neutrons sur l'échantillon dues à des impulsions antérieures sont complètement dominées par les γ de désintégration dus aux éléments irradiés.

Cette composante de niveau constant doit être supprimée dans les spectres en temps. En choisissant une fréquence de faisceau de 440 Hz soit $T_{max} = 2270 \mu s$, il est possible d'observer ce niveau continu sur une grande plage en temps. Ce niveau est déterminé avec un ajustement par une constante. La région d'ajustement varie suivant les deux fréquences utilisées pour les mesures de taux de capture: $2000 \mu s < \Delta_t < 2200 \mu s$ pour $f = 440 \text{ Hz}$ et $2500 \mu s < \Delta_t < 4000 \mu s$ pour $f = 220 \text{ Hz}$ (cf. fig. 5.7). La valeur ajustée de la constante de chacun des spectres leur est soustraite. La figure 5.8(a) illustre pour la cible d'or de $125 \mu m$ d'épaisseur le taux de réaction normalisé après la soustraction due à l'activation. La figure 5.8(b) présente le spectre du bruit de fond également après soustraction du niveau d'activation.

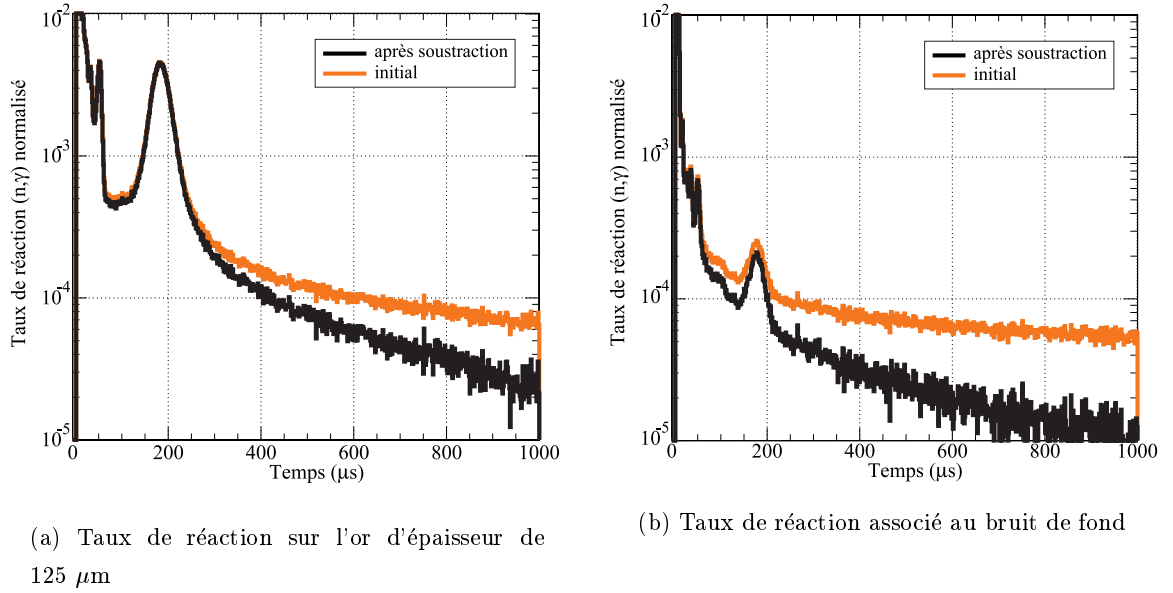


FIG. 5.8 – *Soustraction du niveau constant associé à une éventuelle activation de l'échantillon à laquelle s'ajoute celle des matériaux environnants.*

Les figures 5.8(a) et 5.8(b) montrent que dans le cas de cet échantillon d'or, le niveau constant n'est probablement qu'une contribution due à l'activation de certains matériaux du bruit de fond. Le rapport signal sur bruit étant important, le spectre de capture avec l'échantillon n'est pratiquement pas affecté par cette soustraction au-dessous de $300 \mu s$. Nous verrons dans le chapitre 6 que cette méthode est valable pour des échantillons radioactifs tel que le thorium.

c - Les corrections du bruit de fond

Lors d'une mesure de taux de réaction effectuée avec échantillon, il a été clairement observé qu'une importante partie du signal mesuré provenait des γ du bruit de fond (γ de capture sur les matériaux du photomultiplicateur, du scintillateur, du plomb et de ses impuretés). La présence d'un échantillon placé devant le scintillateur doit logiquement modifier la détection des γ du bruit de fond, ceux-ci étant absorbés de façon différente suivant la nature de l'échantillon. La mesure de bruit de fond sans l'échantillon surestime probablement le bruit de fond réel associé à la mesure avec la cible. Nous devons tenir compte de deux effets induits par la présence de la cible.

La première correction caractérise la réduction partielle du flux de neutrons dans l'environnement proche de l'échantillon, elle est directement reliée à la section efficace de la cible considérée et de son épaisseur. La deuxième correction tient compte de l'atténuation des γ émis par les matériaux du bruit de fond dans l'échantillon. Celle-ci est liée plus directement à la composition atomique de la cible et est indépendante du temps de détection.

• Atténuation du flux de neutrons autour de l'échantillon :

La première correction dont nous devons tenir compte est l'atténuation du flux de neutrons autour de la cible due à la cible elle-même. Pour tenir compte de cet effet, deux simulations du flux de neutrons en fonction du temps ont été effectuées : l'une sans l'échantillon, l'autre avec. Le flux de neutrons calculé est la somme des flux dans des cellules autour de l'échantillon contenant le scintillateur, une partie du photomultiplicateur, le porte-cible et une partie de l'étui de plomb. Le rapport de ces flux calculés avec et sans l'échantillon est effectué. Ce rapport tiendra compte de la modification du flux de neutrons due à la présence de la cible induisant alors une modification du taux de capture en fonction du temps sur les matériaux contribuant au bruit de fond. Cette correction du bruit de fond sera donc différente suivant le taux de réaction expérimental auquel le bruit de fond sera déduit en dernier lieu. La figure 5.9 présente le bruit de fond déduit de l'activation avec la correction apportée par l'effet de la modification du flux de neutrons par la présence de la cible dans le cas d'un échantillon d'or de 1250 μm .

Nous pouvons faire remarquer que cette correction est d'autant plus importante aux temps de détection où la section efficace du noyau considéré est importante. La modification du bruit de fond due à la perturbation du flux de neutrons induit par l'échantillon sur les matériaux environnants sera amplifiée par l'épaisseur de la cible considérée.

• Atténuation des γ du bruit de fond dans l'échantillon :

Le deuxième effet dont nous devons tenir compte est l'atténuation des γ de capture émis par les matériaux contribuant au bruit de fond dans l'échantillon. Là encore, cet effet sera dépendant de la nature de la cible. Cette atténuation sera différente suivant le lieu d'émission des γ du bruit de fond.

La détection des γ s'effectuant dans le scintillateur, la cible représente donc un masque pour la détection des γ produits de l'autre côté de la cible par rapport au scintillateur. Le schéma 5.10 illustre

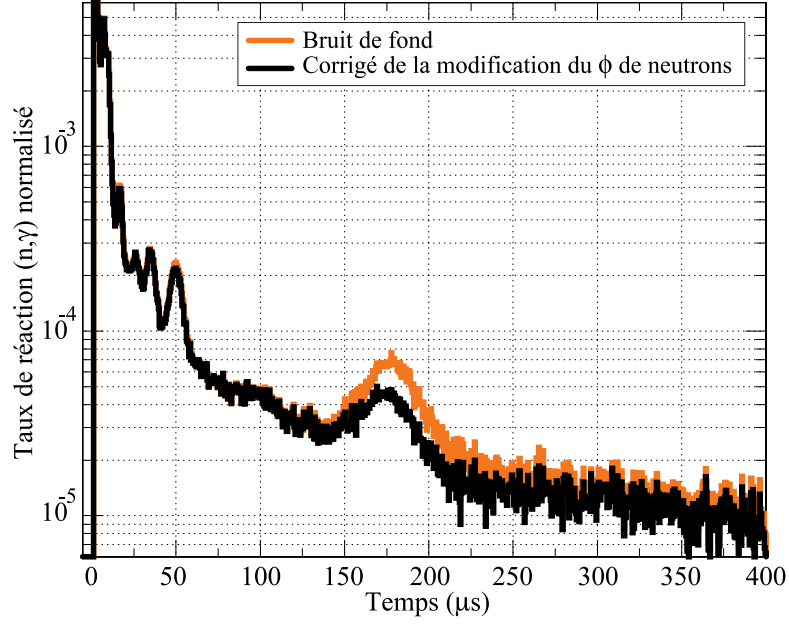


FIG. 5.9 – *Superposition du bruit de fond dont la contribution de l'activation éventuelle des matériaux a été déduite avec le bruit de fond corrigé de l'atténuation du flux de neutrons dans l'environnement proche de l'échantillon d'or de 1250 μm . La réduction est particulièrement visible sur la résonance de l'argent du bruit de fond en raison de la proximité en énergie de celle de l'or.*

la provenance des γ du bruit de fond et ceux qui subiront l'atténuation du fait de la présence de l'échantillon.

Le modèle adopté pour effectuer cette correction est le suivant. L'atténuation des γ traversant perpendiculairement un matériau de densité ρ , d'épaisseur e_{cible} et de demi-longueur d'absorption $d_{\frac{1}{2}}$ s'exprime de la façon suivante :

$$\alpha = \frac{N}{N_0} = e^{\frac{-\rho \times e_{cible}}{d_{\frac{1}{2}}}} \quad (5.3)$$

La valeur de la demi-longueur d'absorption est choisie telle que $d_{\frac{1}{2}} \simeq 10 \text{ g/cm}^2$ pour des γ d'énergie moyenne de l'ordre de 1 MeV [49]. De plus, la surface du scintillateur détectant les γ du bruit de fond est ramenée à un petit cylindre de section égale à la surface de la photocathode du photomultiplicateur ($S_{pk} = 1,65 \text{ cm}^2$) et d'épaisseur $e_{CeF_3} = 0,5 \text{ mm}$ (cf. section 2.1.6). La surface totale de ce petit cylindre inscrit dans le scintillateur est $S_{CeF_3 \text{ tot}} = 5,58 \text{ cm}^2$. L'atténuation des γ du bruit de fond n'est vraie que pour les γ traversant l'échantillon sur la surface équivalente de la photocathode S_{pk} . Seule une fraction des γ du bruit de fond vus par le scintillateur subira cette atténuation. Comme les cibles n'ont pas toutes la même surface, une fraction de S_{pk} seulement transmettra des γ atténués. Cette surface effective est notée $S_{att \text{ eff}}$. Le coefficient d'atténuation C_{att} des γ du bruit de fond dans la cible prend la forme suivante :

$$C_{att} = \frac{\alpha S_{att \text{ eff}} + (S_{cef3 \text{ tot}} - S_{att \text{ eff}})}{S_{cef3 \text{ tot}}} \quad (5.4)$$

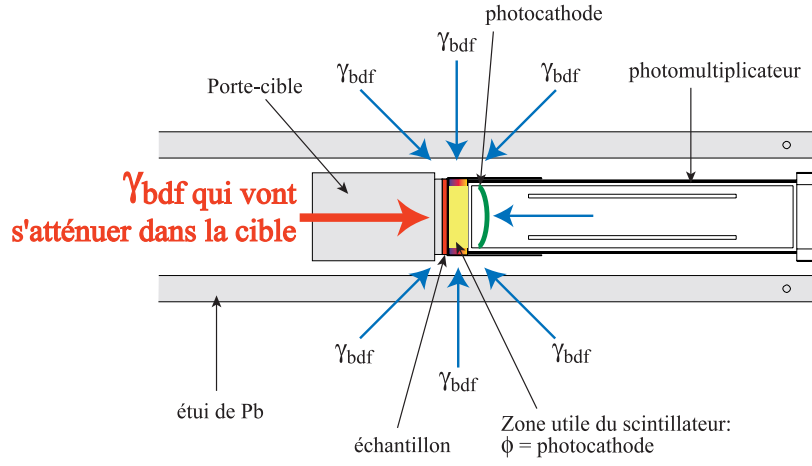


FIG. 5.10 – Schéma de principe de l'atténuation des γ du bruit de fond suivant l'échantillon placé devant le photomultiplicateur. Cette atténuation n'est appliquée qu'aux γ du bruit de fond traversant la cible avant d'atteindre le scintillateur.

Pour un échantillon d'or de $1250 \mu\text{m}$ d'épaisseur, la facteur d'atténuation C_{att} prend pour valeur 0,94; dans le cas d'une cible d'or dix fois plus fine, il est trouvé $C_{att} = 0,99$. le coefficient d'atténuation pour un échantillon de tantale de 3 mm d'épaisseur prend pour valeur 0,92. Pour les échantillons avec lesquels des mesures ont été effectuées, la comparaison des facteurs de correction obtenus montre que la valeur maximum est de 0,9 dans le cas de la cible de tantale de $3000 \mu\text{m}$.

Le bruit de fond soustrait de l'activation des matériaux est alors multiplié par le coefficient d'atténuation C_{att} des γ dans l'échantillon et par le rapport des flux de neutrons avec et sans cible dans l'environnement proche du scintillateur sur lequel la soustraction du bruit de fond va être appliquée. Le bruit de fond corrigé ainsi déterminé correspond bien à celui mesuré avec l'échantillon.

d - Soustraction du bruit de fond au signal

Nous pouvons maintenant soustraire le bruit de fond corrigé au taux de réaction mesuré avec l'échantillon. Il a été déduit à ces deux taux de réaction le niveau constant associé à des activations des matériaux et éventuellement de la radioactivité intrinsèque de l'échantillon. Le bruit de fond corrigé est considéré comme reflétant parfaitement le bruit de fond effectivement détecté pendant la mesure avec l'échantillon. La figure 5.11 présente le taux de réaction de capture normalisé d'un échantillon d'or de $125 \mu\text{m}$ d'épaisseur en fonction du temps de détection après le maximum de l'impulsion de neutrons.

Les taux de capture, noté $n_{(n,\gamma)}(t)$, sont normalisés par les événements du moniteur neutrons. Le taux de réaction sur l'échantillon d'or de $125 \mu\text{m}$ décrit donc la probabilité de réaction (n,γ) en fonction du temps de détection par rapport au maximum d'intensité de l'impulsion de neutrons. Le spectre $n_{(n,\gamma)}(t)$ est le spectre final du taux de capture uniquement sur l'échantillon considéré.

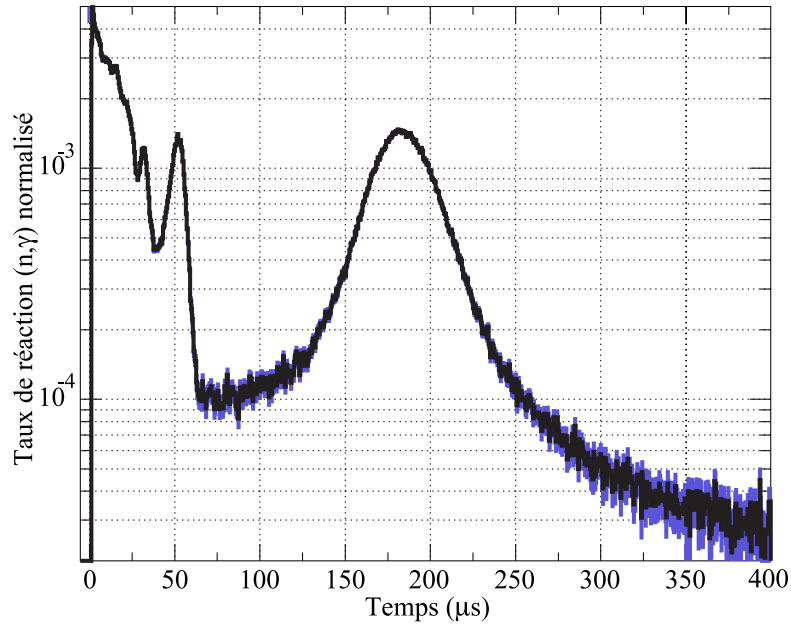


FIG. 5.11 – Taux de réaction (n,γ) normalisé d'un échantillon d'or de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur en fonction du temps de détection.

e - Estimation des erreurs

L'expression des erreurs au fur et à mesure de la procédure s'établit de la façon suivante :

- Si $N(t)$ représente le nombre d'événements initiaux résultant d'une mesure avec échantillon ou de bruit de fond, l'erreur statistique associée s'exprime par : $\delta N(t) = \sqrt{N(t)}$.
- La première opération effectuée est la normalisation par l'intégrale N_{mon} du nombre d'événements comptés pendant l'expérience sur le moniteur à gaz ^3He . L'erreur sur N_{mon} est notée : $\delta N_{mon} = \sqrt{N_{mon}}$. L'expression du spectre normalisé N_{norm} pour la mesure avec et sans échantillon est donc la suivante :

$$N_{norm} \pm \delta N_{norm} = \frac{N(t)}{N_{mon}} \pm \left(\frac{N(t)}{N_{mon}} \sqrt{\frac{1}{N(t)} + \frac{1}{N_{mon}}} \right) \quad (5.5)$$

Le spectre normalisé de la mesure avec échantillon est noté : $N_{norm\ signal}(t)$, celui de la mesure du bruit de fond est noté : $N_{norm\ bdf}(t)$. $N_{mon\ signal}$ et $N_{mon\ bdf}$ sont respectivement le nombre d'événements sur le moniteur pour les mesures avec et sans échantillon.

- Les constantes $C_{irr\ signal}$ et $C_{irr\ bdf}$ associées à l'activation des matériaux sont ensuite retirées aux spectres normalisés (respectivement $N_{norm\ signal}(t)$ et $N_{norm\ bdf}(t)$).

$$N_{signal}(t) = N_{norm\ signal}(t) - C_{irr\ signal} \quad (5.6)$$

$$N_{bdf}(t) = N_{norm\ bdf}(t) - C_{irr\ bdf} \quad (5.7)$$

L'erreur sur ces valeurs sont définies par : $\delta C_{irr\ signal} = \sqrt{\frac{C_{irr\ signal}}{N_{mon\ signal}}}$ et $\delta C_{irr\ bdf} = \sqrt{\frac{C_{irr\ bdf}}{N_{mon\ bdf}}}$. Les erreurs sur les taux de réaction normalisés déduits des constantes d'activation ($N_{signal}(t)$ et

$N_{bdf}(t)$ s'expriment par :

$$\delta N_{signal}(t) = \sqrt{\delta N_{norm\ signal}(t)^2 + \delta C_{irr\ signal}^2} \quad (5.8)$$

$$\delta N_{bdf}(t) = \sqrt{\delta N_{norm\ bdf}(t)^2 + \delta C_{irr\ bdf}^2} \quad (5.9)$$

- Le bruit de fond est ensuite corrigé du facteur d'atténuation des γ du bruit de fond dans la cible noté : $f_{att\ \gamma} \pm \delta f_{att\ \gamma}$ avec $\frac{\delta f_{att\ \gamma}}{f_{att\ \gamma}} = 0,02$. La correction de la modification du flux de neutrons induite par la présence de la cible s'écrit : $f_{flux}(t) \pm \delta f_{flux}(t)$ où $\frac{\delta f_{flux}(t)}{f_{flux}(t)} = 0,02$. Ces corrections du bruit de fond sont traitées comme des erreurs systématiques lors de la détermination du spectre de bruit de fond corrigé $N_{bdf\ cor}$. Il n'y a pas de terme de covariance entre ces différentes corrections et $N_{bdf}(t)$ car $f_{flux}(t)$ n'est fonction que des résultats des simulations et la valeur $f_{att\ \gamma}$ est déduite du modèle développé pour l'atténuation des γ du bruit de fond dans l'échantillon. L'expression du bruit de fond corrigé $N_{bdf\ cor}(t)$ prend la forme :

$$N_{bdf\ cor}(t) = f_{att\ \gamma} f_{flux}(t) N_{bdf}(t) \quad (5.10)$$

$$\delta N_{bdf\ cor}(t) = N_{bdf\ cor}(t) \sqrt{\left(\frac{\delta f_{flux}(t)}{f_{flux}(t)}\right)^2 + \left(\frac{\delta f_{att\ \gamma}}{f_{att\ \gamma}}\right)^2 + \left(\frac{\delta N_{bdf}(t)}{N_{bdf}(t)}\right)^2} \quad (5.11)$$

- Le taux de réaction de capture sur l'échantillon est la soustraction du taux de réaction du signal N_{signal} par le bruit de fond corrigé $N_{bdf\ cor}$. Les relations 5.8 à 5.11 permettent de déduire l'expression du taux de capture normalisé $n_{(n,\gamma)}(t)$ en fonction du temps prend la forme suivante :

$$n_{(n,\gamma)}(t) \pm \delta n_{(n,\gamma)}(t) = N_{signal} - N_{bdf\ cor} \pm \sqrt{\delta N_{signal}(t)^2 + \delta N_{bdf\ cor}(t)^2} \quad (5.12)$$

5.1.8 Efficacité du détecteur CeF_3

L'efficacité du détecteur CeF_3 est définie comme étant le rapport du nombre de réactions détectées sur le nombre de réactions ayant réellement eu lieu dans l'échantillon. Celle-ci n'a pas fait l'objet ici d'une détermination absolue. Nous allons discuter de la variation éventuelle de cette efficacité avec l'énergie des neutrons (corrélée au temps de ralentissement). On sait que l'efficacité de détection d'une capture peut dépendre fortement de la cascade γ qui suit la capture des neutrons mais également des variations du gain du détecteur en fonction du temps de ralentissement.

Enfin, l'efficacité pourrait varier avec l'énergie des neutrons. En effet, l'énergie totale de la cascade varie légèrement avec celle des neutrons et on peut donc penser que la variation d'énergie d'excitation du noyau $A + 1$ peut entraîner une variation de la cascade γ .

Nous avons donc étudié en détail les différentes causes de variation d'efficacité et sélectionné avec soin les mesures que nous avons analysées.

a - Variations du gain pendant le temps de ralentissement

Pour effectuer cette étude, nous nous plaçons hors du massif de plomb, nous avons monté sur le scintillateur, deux LED identiques à celle employée pendant l'expérience (cf. section 2.1.6). La réponse

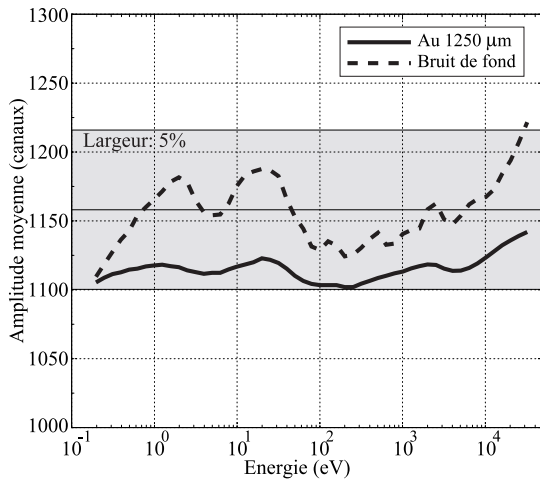
du détecteur peut être étudiée en fonction du temps de déclenchement entre les deux impulsions de lumière. La première LED simule les γ émis pendant l'impulsion de neutrons, la deuxième LED simule une capture neutronique se produisant à un temps de ralentissement t_r que l'on peut faire varier par rapport à la première. La gamme de temps t_r entre les deux impulsions sur laquelle l'étude a porté s'étale entre quelques centaines de nanosecondes et plusieurs centaines de microsecondes.

Les résultats obtenus par cette mesure nous assurent que le gain du photomultiplicateur est stable quelle que soit la proximité des impulsions précédant celle analysée. La variation de gain a été mesurée inférieure à 3%. Ainsi la variation rapide du taux de comptage instantané pendant et après l'impulsion de neutrons de 14 MeV n'entraîne pas de variation notable du gain et donc d'efficacité.

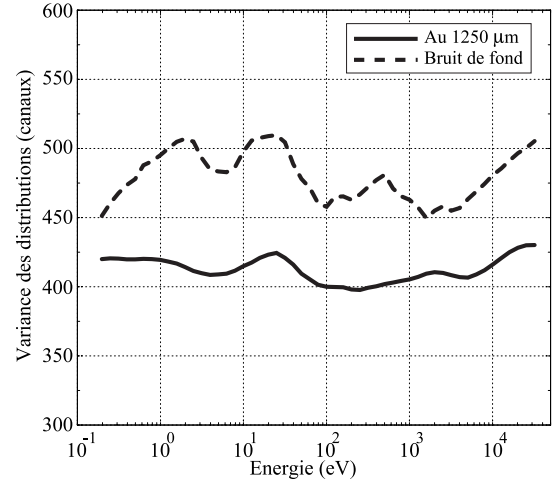
b - Caractérisation du spectre d'amplitude en fonction du temps de ralentissement t_r

Pour étudier la variation de la réponse en amplitude du photomultiplicateur en fonction du temps de ralentissement, les données de chaque expérience se produisant au temps de détection t_r ont été converties en fonction de l'énergie cinétique des neutrons au moment de l'interaction. Nous pouvons donc connaître la réponse en amplitude du détecteur CeF_3 en fonction de l'énergie.

Pour étudier les variations de la réponse en amplitude en fonction de l'énergie, nous avons calculé la valeur moyenne de l'amplitude et la variance de la distribution d'amplitude. Les figures 5.12(a) et 5.12(b) illustrent, pour le signal enregistré avec l'échantillon d'or de 1250 μm d'épaisseur et pour la mesure de bruit de fond, la variation des valeurs moyennes et des variances de l'amplitude du signal détecté en fonction de l'énergie.



(a) Courbes de l'amplitude moyenne des réponses du détecteur CeF_3



(b) Courbes des variances des réponses en amplitude du détecteur CeF_3

FIG. 5.12 – Courbes de la valeur moyenne et de la variance des distributions en amplitude du détecteur CeF_3 en fonction de l'énergie des neutrons pour un échantillon d'or de 1250 μm d'épaisseur et de 2 cm^2 ainsi que pour le bruit de fond

La bande grise visible sur la figure 5.12(a) représente les limites des variations à plus ou moins 5% de l'amplitude autour de leur valeur moyenne en fonction de l'énergie des neutrons. Nous pouvons constater que les amplitudes moyennes ne s'écartent pas de plus de 5% entre 0,1 eV et 30 keV d'énergie des neutrons aussi bien pour la mesure avec échantillon que pour la mesure du bruit de fond. Nous pouvons observer que la courbe associée au bruit de fond fluctue dans de plus grandes proportions que celles associées à l'or : c'est le reflet des captures sur des éléments très divers (Pb, F, Ce, Cu, Ag ...) ayant des contributions variables suivant l'énergie des neutrons. Nous pouvons aussi observer que la variance des distributions d'amplitudes associées au bruit de fond traduisent bien cette diversité de matériaux mis en jeu et donc des différentes cascades γ qui sont détectées. Pour la mesure avec échantillon, la réponse est plate sur toute la région d'énergie. En effet, dans le cas de l'or, le rapport signal sur bruit est élevé, l'importance de la diversité des noyaux du bruit de fond est donc faible et la cascade privilégiée reste celle de l'or.

Nous pouvons maintenant nous axer sur l'observation d'une éventuelle modification de la détection des γ de capture d'or. Le spectre bidimensionnel du taux de capture sans échantillon en fonction de l'amplitude détectée et de l'énergie des neutrons est soustrait au spectre bidimensionnel du taux de capture avec l'échantillon. Nous pouvons alors déterminer, pour chaque valeur de l'énergie, l'amplitude moyenne et la variance de la distribution du taux de capture sur l'or; la figure 5.13 présente les résultats obtenus.

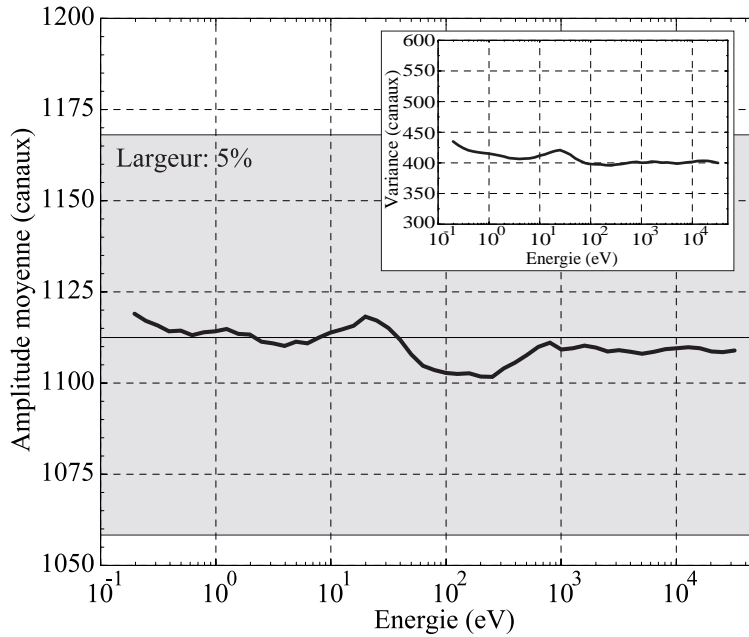


FIG. 5.13 – Amplitude moyenne du taux de capture sur l' ^{197}Au expérimental en fonction de l'énergie cinétique des neutrons. La variance est montrée en encart.

Nous observons clairement, dans le cas de l'or, que l'amplitude moyenne et la variance ne varient presque pas. L'amplitude moyenne ne varie pas de plus de 3% entre 0,1 eV et 30 keV. Nous observons que les γ de capture de l' ^{197}Au sont détectés toujours de la même façon, quelle que soit l'énergie des

neutrons.

Cette étude a été appliquée de façon systématique à tous les échantillons traités et aux différents bruits de fond mesurés. Les résultats sont similaires à ceux obtenus pour l'échantillon d'or de 1250 μm d'épaisseur. L'ensemble des résultats sur les échantillons montrent que la dispersion des positions moyennes des réponses en amplitude du détecteur CeF_3 ne dépasse pas 5% entre 0,1 eV et 30 keV comme nous pouvons l'observer pour quelques échantillons regroupés sur la figure 5.14.

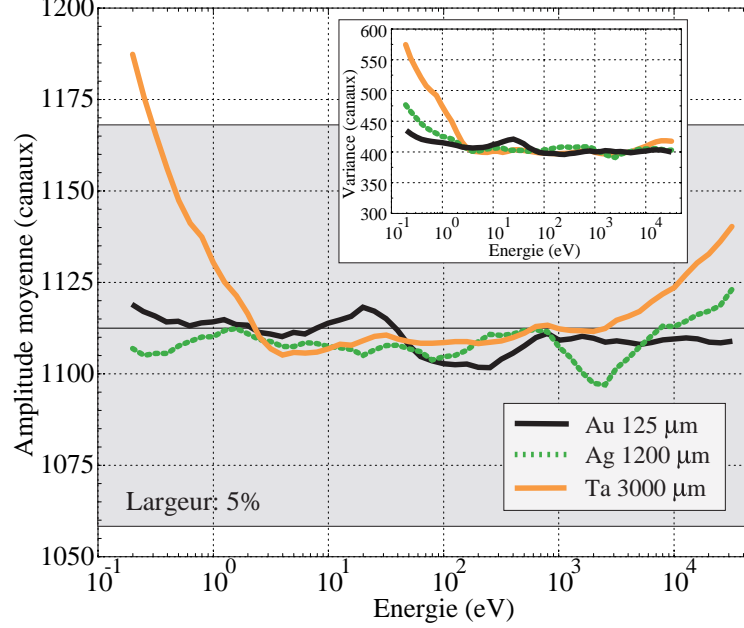


FIG. 5.14 – Amplitude moyenne du taux de capture sur $l^{197}\text{Au}$, l'argent et le ^{181}Ta expérimental en fonction de l'énergie cinétique des neutrons. La variance est montrée en encart.

c - Étude théorique de la réponse en amplitude

Pour tenter de comprendre le contenu du spectre obtenu expérimentalement et d'étudier les variations d'efficacité de détection, nous avons développé un modèle permettant la reconstruction des spectres d'amplitude expérimentaux à divers temps de détection t_r .

En premier lieu, ce modèle doit tenir compte de la distribution des γ primaires émis lors de la capture d'un neutron par un noyau. Après la capture d'un neutron, l'énergie d'excitation du noyau formé est donnée par $E^* = S_n + E_n$ où S_n est l'énergie de liaison d'un neutron dans le noyau final et E_n l'énergie du neutron à l'instant de la capture. Dans la plupart des cas, la densité de niveaux autour de cette énergie d'excitation est très importante et les γ de décroissance peuvent être traités statistiquement. Nous savons que les cascades de désexcitation γ sont très différentes pour la plupart des matériaux [50, 51]. Néanmoins la forme générale de la distribution de l'énergie E_γ des raies γ primaires peut être décrite par [52] :

$$I(E_\gamma) = E_\gamma^3 \exp\left(\frac{E_0 - E_\gamma}{T}\right) \quad (5.13)$$

où E_0 est l'énergie de décroissance (l'énergie d'excitation E^* du noyau formé) et T la température. Dans notre cas, E_0 est la somme de l'énergie libérée Q par la réaction de capture sur le noyau considéré et de l'énergie du neutron E_n au moment de sa capture soit : $E_0 = Q + E_n$. La température T est reliée à E_0 et à la masse A du noyau considéré tel que : $E_0 = \frac{A}{8}T^2$. Pour un noyau de masse A , un neutron d'énergie E_n , et une énergie libérée par la réaction de capture Q , il est donc possible de déterminer l'énergie des γ de décroissance suivant la loi de probabilité (5.13).

Dans notre modèle, nous devons aussi tenir compte de la dispersion en énergie de la relation énergie-temps. A un temps de détection t_r , il existe une distribution du flux de neutrons $\Phi(E)$ (cf. fig. 4.6) tenant compte de la dispersion des neutrons autour de la valeur moyenne. De plus, chaque distribution $\Phi(E)$ doit être convoluée pour tenir compte de la forme de l'impulsion de neutrons de GENEPI. La figure 5.15 illustre pour différents temps de détection t_r , ces flux de neutrons simulés et convolués :

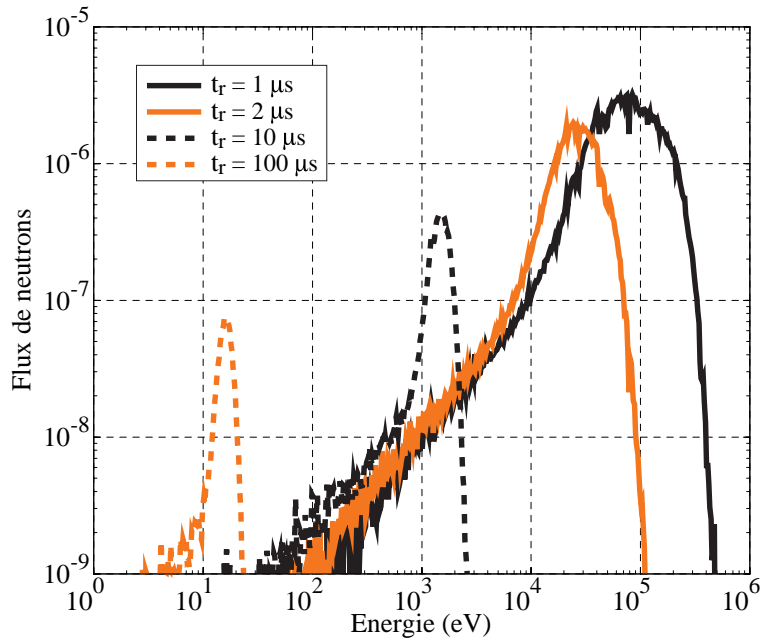


FIG. 5.15 – *Distribution en énergie du flux de neutrons simulé pour différents temps de ralentissement. Ces distributions en énergie permettent de reconstruire à un temps de détection t_r , le spectre γ émis par l'échantillon*

Nous pouvons remarquer sur la figure 5.15 que la distribution du flux de neutrons à $t_r = 1 \mu s$ présente un spectre très large entre 100 eV et 500 keV, centré à 100 keV. Nous rappelons que les études des taux de capture sont effectuées pour des temps de détection supérieurs à $1 \mu s$ en raison du veto appliqué pendant l'impulsion de neutrons. La distribution en énergie à $t_r = 2 \mu s$ montre un flux de neutrons centré à 30 keV et le maximum en énergie du flux est limité à 100 keV. Nous pouvons alors nous demander si au temps de détection de $1 \mu s$ et $2 \mu s$, il peut être produit des noyaux dans le moment angulaire $L = 1$ dont la cascade γ résultante serait susceptible de modifier notablement l'efficacité pour les temps de détection les plus faibles.

Pour cela, nous calculons l'énergie seuil nécessaire au neutron lors de sa capture sur un noyau de masse A pour pouvoir produire un noyau dans le moment angulaire $L = 1$. Cette énergie seuil est déterminée classiquement en calculant cette énergie à partir du paramètre d'impact maximum sur le noyau formé de rayon R , l'impulsion minimum pour avoir un noyau dans le moment angulaire 1. L'expression de cette énergie seuil est donnée par [31] :

$$E_{(L=1)} = \frac{\hbar^2 L^2}{2M_n R^2} = \frac{(\hbar c)^2 L^2}{2M_n c^2 r_0^2 (A+1)^{2/3}} \quad (5.14)$$

où $\hbar c$ est l'énergie de Fermi (197,3 MeV.fm), $M_n c^2$ est la masse du neutron en MeV, A est la masse du noyau cible, r_0 est la rayon de Fermi ($r_0 = 1,2 \text{ fm}$) tel que $R = r_0 (A+1)^{1/3}$, et L est le moment angulaire du noyau composé qui prendra pour valeur 1. Nous pouvons noter que plus le noyau formé sera lourd, plus l'énergie $E_{(L=1)}$ sera basse. La valeur de cette énergie pour le manganèse est de l'ordre de 1,2 MeV; pour le thorium, on trouve 470 keV et pour l' ^{197}Au , on trouve $E_{(L=1)} = 510 \text{ keV}$. Nous pouvons donc conclure que l'énergie des neutrons sera toujours trop faible pour pouvoir former de façon significative un noyau composé dans l'état de moment angulaire $L = 1$. Même à $t_r = 1 \mu\text{s}$, qui est notre limite inférieure d'observation, nous ne formons pas (ou une fraction négligeable) de noyau composé dans l'état de moment angulaire $L = 1$.

Nous pouvons alors maintenant nous axer sur la dépendance éventuelle de la cascade γ détectée en fonction du temps de ralentissement. Pour un temps de détection fixé, la convolution de la distribution (5.13) en énergie des γ de capture par la distribution en énergie des neutrons (cf. fig. 5.15) nous permet de construire la distribution $f(E_\gamma)$ des γ de capture émis par le noyau considéré.

Le dépôt d'énergie des γ dans le scintillateur doit ensuite être simulé. Une simulation GEANT [53] a donc été effectuée. La géométrie prise en compte pour cette simulation tient compte du scintillateur CeF_3 dans lequel le calcul de dépôt d'énergie est effectué, d'un échantillon d'or d'épaisseur $100 \mu\text{m}$ placé devant le scintillateur et d'un environnement de plomb. Des γ d'énergie fixe sont émis dans 4π par l'échantillon. Nous pouvons déterminer pour chaque γ d'énergie E_γ l'énergie déposée $D(E_\gamma)$ dans le scintillateur avec une certaine efficacité.

Connaissant le dépôt d'énergie $D(E_\gamma)$ pour des γ d'énergie E_γ et la distribution $f(E_\gamma)$ en énergie des γ de capture émis par le noyau considéré à un temps de détection t_r fixé, nous pouvons en déduire le dépôt d'énergie $D(t_r)$ dans le scintillateur au temps de ralentissement t_r .

Les figures 5.16(a) et 5.16(b) présentent les dépôts d'énergie dans le scintillateur pour l'or (noyau lourd) et pour le manganèse (noyau léger) à différents temps de ralentissement.

Nous pouvons observer tout d'abord sur les figures 5.16(a) et 5.16(b) que la réponse du détecteur est indépendante du temps de ralentissement. Le dépôt d'énergie des γ est le même quel que soit le temps auquel la détection est effectuée ($t_r > 1 \mu\text{s}$). Grâce à la relation énergie-temps, nous concluons donc par simulation que nous avons toujours la même probabilité de détecter les γ de capture quelle que soit l'énergie cinétique E_n du neutron au-dessous de 50 keV. Nous pouvons ensuite observer qu'il y a une probabilité non nulle de déposer l'énergie de réaction Q ($Q_{Au} = 6,51 \text{ MeV}$ et $Q_{Mn} = 7.271 \text{ MeV}$) dans

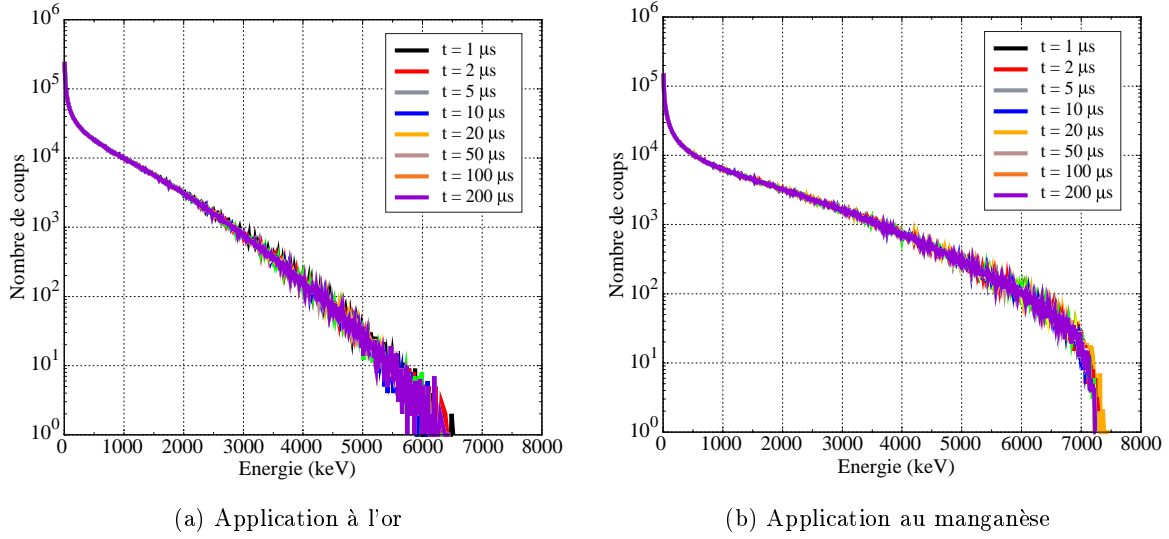
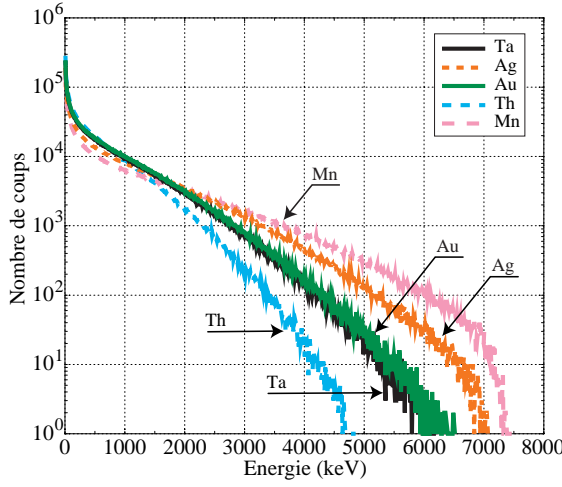


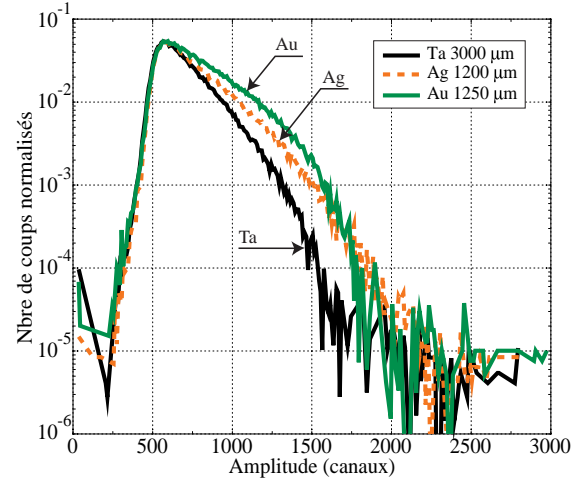
FIG. 5.16 – Dépôt d'énergie simulé dans le scintillateur CeF_3 à différents temps de ralentissement.

le détecteur. Nous remarquons aussi que la probabilité de détection n'est pas la même pour l'or et le manganèse, les formes des spectres ne sont pas identiques pour les deux noyaux. Nous pouvons vérifier cela expérimentalement. La figure 5.17(a) présente la superposition des dépôts d'énergie simulés dans le scintillateur pour différents noyaux au temps de détection $t_r = 1 \mu s$. La figure 5.17(b) présente les spectres en amplitude des taux de capture expérimentaux pour le tantale, l'argent et l'or avec un seuil analogique autour du canal 600.

Nous pouvons observer sur la figure 5.17(b) que la réponse en amplitude du détecteur CeF_3 est effectivement différente suivant la nature de l'échantillon placé devant le scintillateur. Nous confirmons expérimentalement cette différence de détection des γ de capture pour les échantillons de tantale, d'argent et d'or. Les grandes amplitudes détectées sont liées à l'énergie totale disponible. Nous pouvons remarquer que la distribution du dépôt d'énergie simulé, pour un noyau donné, ne reproduit pas très bien la mesure (cf. fig. 5.17(a)). Mais notre modèle simple n'a pas pour objectif de reconstruire de façon précise le dépôt d'énergie dans le détecteur, celui-ci a pour but avant tout de montrer que la cascade de γ émise est indépendante du temps de ralentissement. Il met néanmoins en évidence une dépendance de l'efficacité avec le noyau, la cascade γ émise est différente suivant la nature de l'échantillon placé devant le scintillateur. L'effet de la multiplicité des γ émis lors d'une capture ne joue dans ce type d'expérience qu'un rôle mineur vis à vis d'une éventuelle variation de l'efficacité de détection compte tenu de la précision admise sur nos résultats. En effet, la gamme d'énergie qui nous est accessible ($E_n < 30 \text{ keV}$) est, pour chacun des nucléides avec lesquels nous avons travaillé, très inférieure à l'énergie de liaison du dernier neutron. De même, la résolution du massif de plomb est suffisamment basse pour que l'effet de la variation de la multiplicité du nombre de neutron dans une résonance sur l'efficacité de détection ne soit pas réellement appréciable.



(a) Dépôt d'énergie simulé dans le scintillateur CeF_3 pour le tantale, l'argent, l'or, le thorium et le manganèse (avec une cascade statistique).



(b) Taux de capture sur les échantillons de tantale, d'argent et d'or en fonction de l'amplitude du signal détecté. Nous pouvons observer le seuil analogique appliqué au canal 600

FIG. 5.17 – Comparaison des spectres du dépôt d'énergie simulés avec les réponses en amplitude expérimentales des taux de capture sur différents échantillons.

d - L'efficacité du détecteur CeF_3 : conclusions

Dans cette section, il a été traité en détail :

- L'étude du gain du photomultiplicateur : elle a montré que celui-ci ne variait pas après le passage de l'impulsion de neutrons dans le détecteur quel que soit le temps entre deux impulsions successives.
- Les variations de l'amplitude expérimentale en fonction de l'énergie cinétique des neutrons : la réponse en amplitude du détecteur pour tous les échantillons ne varie pas de plus de 5% entre 0,1 eV et 30 keV.
- La reconstruction du dépôt d'énergie dans le scintillateur : elle a montré que la cascade de γ détectée était indépendante du temps de ralentissement (de l'énergie cinétique du neutron) au-dessus de 1 μs . Nous avons aussi vérifié expérimentalement que la détection était différente suivant le noyau considéré et donc suivant la cascade γ .

Nous pouvons donc conclure que :

- L'efficacité du détecteur CeF_3 n'est pas la même suivant les échantillons placés devant le scintillateur.
- L'efficacité de détection dans notre expérience ne varie pas de plus de 5% pour tous les échantillons entre 0,1 eV et 30 keV.

5.1.9 Caractéristiques des échantillons utilisés

Les caractéristiques des échantillons utilisés avec le détecteur CeF_3 sont regroupées dans le tableau 5.2. Le libre parcours moyen $\lambda = \frac{1}{N\sigma_{tot}}$ des neutrons pour l'énergie d'une résonance caractéristique du noyau dans le domaine des résonances résolues ainsi que la valeur du libre parcours moyen pour le matériau considéré autour de 500 eV ont été rajoutés.

Cible	Masse (mg)	Épaisseur	λ (μm) E_{res}	λ (μm) $E \sim 500 \text{ eV}$
^{197}Au	1008,6	125 μm	6,0 (4,9 eV)	$1,695.10^3$
	4023,8	500 μm		
	10131,3	1250 μm		
^{181}Ta	666,16	100 μm	16,0 (4,28 eV)	$2,664.10^3$
	1355,4	200 μm		
	21062	3000 μm		
In_{nat}	456,5	300 μm	9,0 (1,46 eV)	$13,05.10^3$
	1429	500 μm		
	5716	2000 μm		
Ag_{nat}	420	100 μm	14,0 (5,2 eV)	$5,69.10^3$
	1281	300 μm		
	4914	1200 μm		
^{232}Th	820,4	175 μm	104,0 (23,43 eV)	$16,44.10^3$
	4669,6	1000 μm		
	4669,6	4000 μm		
U_{nat}	1997	180 μm	30,0 (6,7 eV)	$10,43.10^3$
$^{99}\text{Tc-Al}$	340 mg (Tc) et 6477 mg (Al)	6400 μm	2070,0 (5,59 eV)	$103,1.10^3$
W_{nat}	7720	1000 μm	5,0 (18,8 eV)	$15,8.10^3$
Ni_{nat}	10682	3000 μm		$6,085.10^3$
Mo_{nat}	4088	1000 μm	82,0 (45 eV)	$5,198.10^3$
^{55}Mn	2981,6	$\sim 2400 \mu\text{m}$	38,0 (337 eV)	

TAB. 5.2 – *Caractéristiques des échantillons utilisés avec le détecteur CeF_3 . Libre parcours moyen des noyaux considérés pour une énergie de résonance et autour de 500 eV.*

Les échantillons ont tous une surface de $(2 \times 2) \text{ cm}^2$. Sauf la cible d'indium de 300 μm dont la surface est de $(1,5 \times 1,5) \text{ cm}^2$, celle de thorium de 4000 μm de 1 cm^2 et le fragment de manganèse qui a une surface d'environ $(1,3 \times 1,3) \text{ cm}^2$.

Nous pouvons remarquer que l'ensemble des échantillons ont des épaisseurs supérieures aux libres parcours moyens qui leur sont associés pour la résonance résolue identifiée. La capacité des cibles à absorber le flux de neutrons et les γ de capture sera importante dans ces résonances. *A contrario*,

dans la zone des résonances non résolues ($E_n \sim 500 \text{ eV}$), seul l'échantillon de tantale de $3000 \mu\text{m}$ est supérieur au libre parcours moyen des neutrons dans ce matériau. Dans cette zone d'énergie, les épaisseurs de tous les échantillons sont inférieures au libre parcours moyen des neutrons.

Le temps de mesure pour un échantillon est de l'ordre de 5 à 10 heures à la fréquence de 220 Hz ou 440 Hz et une intensité du faisceau d'environ 30 mA crête. Le temps de mesure caractéristique pour le bruit de fond est de l'ordre de 5 heures dans les mêmes conditions de faisceau. Une mesure complète (cible et bruit de fond) nécessite donc environ une douzaine d'heures de faisceau.

5.2 Les simulations : données extraites et traitements

5.2.1 Les données des simulations

L'objectif est de permettre de façon aisée la comparaison des simulations réalisées avec différentes bases de données aux taux de capture expérimentaux pour le matériau considéré. Le traitement doit être le même pour tous les corps simulés.

Les simulations ont été effectuées avec une base de temps de 3 ms avec une largeur de canal identique à l'expérience, soit 100 ns de largeur. Les taux de capture que l'on notera $\sigma\phi(t)$ résultant des simulations avec MCNP sont extraits de façon systématique. L'erreur statistique donnée par la simulation est aussi conservée. Le spectre simulé du taux de réaction est décalé de la valeur de l'origine de l'impulsion de neutrons associée à l'expérience avec laquelle la comparaison va être effectuée (cf. section 5.1.2). L'erreur associée à ce décalage du spectre simulé est fixée à la largeur d'un canal, soit 100 ns. La procédure appliquée lors du décalage est identique à celle utilisée pour le taux de réaction (n,p) sur hélium 3 simulé et pour le taux de fission de l' ^{233}U simulé (cf. section 4.3.1).

Les taux de réaction de capture ont été simulés pour une émission de neutrons sans largeur temporelle. Ils doivent donc être convolués par la forme de l'impulsion de GENEPI. La procédure utilisée est identique à celle utilisée lors de la convolution des taux de réaction $^3\text{He}(n,p)t$ et (n,f) sur l' ^{233}U simulés (cf. section 4.3.1). La forme de l'impulsion utilisée est décrite dans la figure 3.3.

5.2.2 La normalisation des taux de capture simulés à l'expérience

Les taux de réaction simulés sont exprimés en un nombre d'événements par 10^{24} cm^2 et par neutron émis par la source. Les spectres expérimentaux sont exprimés par un nombre de réactions normalisé par le moniteur neutron placé dans le canal de gauche. De plus, il a été montré que l'efficacité du détecteur CeF_3 ne variait pas de plus de 5% dans la gamme d'énergie entre 0,1 eV et 30 keV. La relation énergie-temps étant valide entre ces deux énergies; la gamme de temps de ralentissement associée est donc : $2 \mu\text{s} < T_r < 1296 \mu\text{s}$. Les taux de réaction simulés sont donc ajustés sur les spectres expérimentaux dans la région des temps de ralentissement entre $41 \mu\text{s} < T_r < 390 \mu\text{s}$ ($1 \text{ eV} < E_n < 200 \text{ eV}$). Le rapport des spectres expérimentaux et simulés est effectué. Ce rapport est ensuite ajusté par une constante qui nous permettra par la suite de normaliser la simulation. Une erreur relative estimée à 1,5% est affectée à cette constante pour tenir compte de l'incertitude sur la méthode d'ajustement employée.

La figure 5.18 présente le spectre simulé en fonction du temps de détection et le spectre expérimental du taux de capture normalisé $n_{(n,\gamma)}(t)$ pour un échantillon d'or d'épaisseur $125\ \mu\text{m}$. Le taux de capture simulé utilise la base de données ENDF/B-VI pour l'or et la base de données JENDL3.2 pour le plomb du massif (cf. section 4.4).

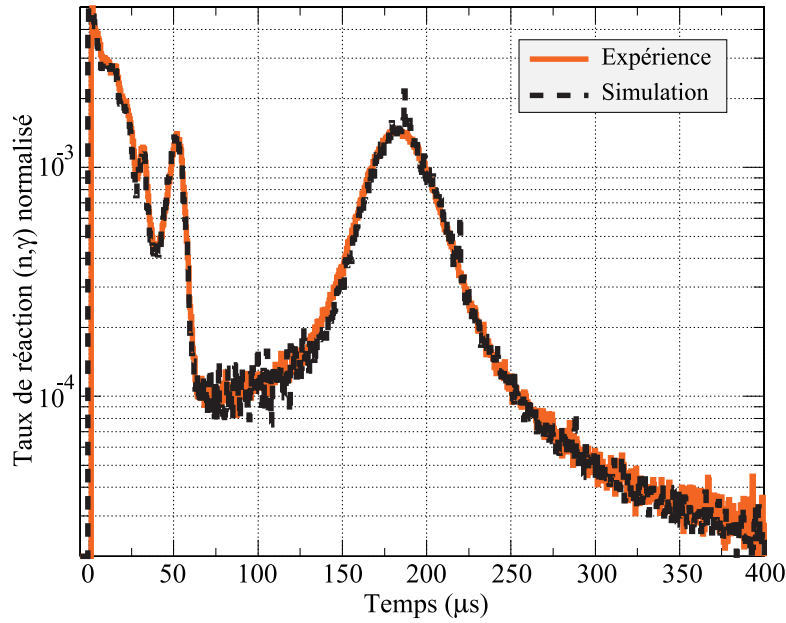


FIG. 5.18 – *Taux de réaction de capture dans un échantillon d'or de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur : superposition du spectre simulé avec celui obtenu dans l'expérience.*

Ce type de représentation permet dans un premier temps de vérifier la méthodologie appliquée pour l'analyse des données expérimentales et simulées. Elle permet dans un deuxième temps de contrôler que la simulation décrit bien les taux de réaction sur les échantillons et qu'il n'y a pas a priori d'erreur dans la description de la géométrie de l'environnement de l'échantillon. Nous allons observer dans la section 5.2.3 comment certaines erreurs dues à la méconnaissance de certains matériaux peut perturber les taux de capture calculés.

Nous pouvons observer un excellent accord des résultats des taux de capture entre la simulation et l'expérience dans une très large gamme de temps de ralentissement. La bonne connaissance de la section efficace de l'or nous a permis de pouvoir décrire de façon satisfaisante l'ensemble de la procédure d'analyse. Il aurait été également possible de traiter la description de la procédure en utilisant l'argent ou le tantale. Les résultats des échantillons listés dans le tableau 5.2 seront décrits dans le chapitre 6.

5.2.3 L'effet hydrogène

La relation liant l'énergie cinétique à son temps de ralentissement a déjà été étudiée dans la section 2.1.3. Nous avons vu que lors d'un choc élastique sur un noyau de plomb, un neutron perd en moyenne 1% de son énergie cinétique. Nous avons vu également que la diffusion des neutrons dans un milieu de masse atomique très supérieure à l'unité entraîne le regroupement de ces neutrons dans

une gamme de vitesse qui décroît à mesure que le temps de ralentissement augmente. Mais, comme nous l'avons vu, des matériaux "parasites" peuvent modifier localement notablement la relation liant l'énergie des neutrons à leur temps de ralentissement.

L'un de ces noyaux pénalisants lors des mesures de taux de capture est l'hydrogène. Celui-ci est présent uniquement dans le détecteur CeF_3 . Malgré le choix d'adhésifs spécialement pauvres en hydrogène, il est impossible de supprimer complètement les matériaux hydrogénés. Il est présent également dans la graisse optique employée pour le contact entre le scintillateur et la photocathode du photomultiplicateur. La colle de l'adhésif en Téflon recouvrant le tube du photomultiplicateur et de l'adhésif aluminisé en tissu de verre assurant l'étanchéité à la lumière entre le scintillateur et le photomultiplicateur contient du silicone, or les silicones contiennent des atomes d'hydrogène (cf. fig. 2.10).

Lorsqu'un neutron effectue une diffusion élastique sur un noyau d'hydrogène, celui-ci perd en moyenne la moitié de son énergie cinétique (cf. eq 2.2). Les neutrons se ralentissent donc beaucoup plus vite sur l'hydrogène que sur le plomb. Les épaisseurs mises en jeu sont relativement faibles, mais la probabilité qu'un neutron effectue une diffusion sur un noyau d'hydrogène n'est pas nulle. Celui-ci est alors expulsé de la relation énergie-temps. Il est donc possible d'avoir des neutrons d'une énergie cinétique donnée à un temps de ralentissement inférieur à celui qu'ils auraient dû avoir dans un milieu ralentisseur composé uniquement de plomb. Cela entraîne alors une faible diminution du flux de neutrons au temps de ralentissement théoriquement associé à l'énergie donnée par l'équation (2.10).

La figure 5.19 illustre les flux des neutrons, pour les énergies comprises entre 4 eV et 6,2 eV, simulés dans l'échantillon d'or avec et sans hydrogène dans les adhésifs. Les flux totaux avec et sans hydrogène dans la cellule de l'échantillon sont également présentés (lignes en tirets).

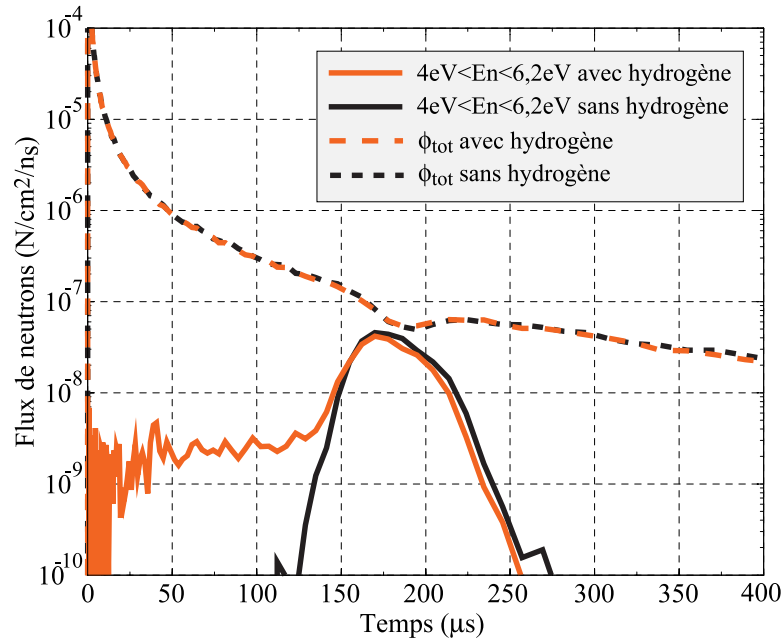


FIG. 5.19 – Flux de neutrons total et pour $4,0 \text{ eV} < E_n < 6,2 \text{ eV}$ calculés dans l'échantillon d'or de $125 \mu\text{m}$ d'épaisseur avec et sans hydrogène dans la graisse optique et la colle silicone.

Nous constatons que les flux de neutrons totaux (lignes en tirets) des neutrons ne sont pratiquement pas modifiés par la présence d'atomes d'hydrogène. La comparaison des flux de neutrons avec et sans hydrogène, sélectionnés dans la bande d'énergie comprise entre 4 eV et 6,2 eV montre que la proportion des neutrons ayant diffusé sur l'hydrogène représente 37% du flux de neutrons sans hydrogène dans la même région d'énergie.

Nous pouvons observer maintenant le taux de réaction de capture en fonction du temps sur l'échantillon d'or de 125 μm d'épaisseur calculé avec et sans hydrogène. La figure 5.20 présente d'abord ces taux de capture simulés sélectionnés dans la bande d'énergie comprise entre 4 eV et 6,2 eV (ligne grise et noire). Il est aussi représenté les taux de capture totaux : la ligne en tiret grise correspond à la simulation avec hydrogène, la ligne en tiret noire illustre la simulation sans hydrogène. Il a été rajouté sur cette figure le taux de réaction expérimental sur l'échantillon d'or de 125 μm d'or (ligne grise superposant la simulation du taux de réaction total avec hydrogène). La sélection des énergies cinétiques des neutrons de $4,0 \text{ eV} < E_n < 6,2 \text{ eV}$ encadre la résonance à 4,9 eV de l'or.

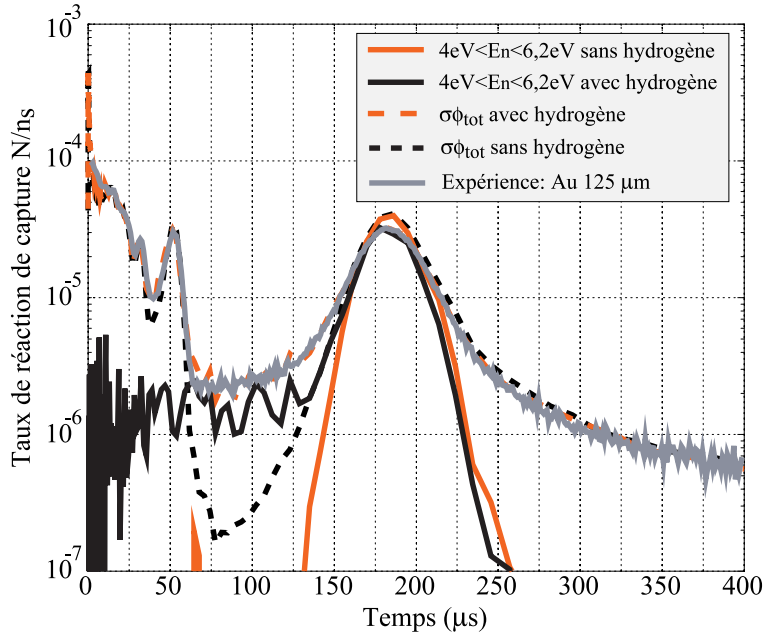


FIG. 5.20 – Taux de réaction total et pour $4,0 \text{ eV} < E_n < 6,2 \text{ eV}$ calculés dans l'échantillon d'or de 125 μm d'épaisseur avec et sans hydrogène dans la graisse optique et la colle silicone, superposition avec le spectre de capture expérimental.

La présence d'hydrogène induit un ralentissement plus rapide des neutrons dans l'environnement proche de la cible. Le flux associé à la région d'énergie entre 4,0 eV et 6,2 eV est non nul pour des temps de ralentissement inférieurs à ceux normalement attendus pour cette zone d'énergie cinétique. Sur les taux de réaction de capture, cela provoque un remplissage entre les résonances des échantillons. Ce remplissage est d'autant plus visible dans le cas de l'or car la section efficace de la résonance à 4,9 eV est très élevée et bien séparée des suivantes à plus hautes énergies.

L'accord observé entre l'expérience et le taux de réaction simulé avec hydrogène ne provient pas

d'un ajustement de la quantité d'hydrogène dans les adhésifs et la graisse optique. Il a été effectué des mesures par résonance magnétique nucléaire sur différents échantillons de polyéthylène, d'adhésifs, de circuit imprimé de la base de photomultiplicateur pour déterminer la vraie quantité d'hydrogène présente dans les matériaux. La description du détecteur CeF_3 a alors pu être précisée.

5.3 Conclusion

Dans ce chapitre, l'accent a été mis sur :

- L'importance de l'origine des temps de l'impulsion de neutrons
- La correction des spectres en temps par les événements empilés
- L'importance d'une bonne compréhension du bruit de fond
- L'indépendance de l'efficacité de détection avec l'énergie cinétique des neutrons.

Le traitement complet des données expérimentales et simulées a aussi été effectué. Cette méthode est appliquée de façon systématique à tous les échantillons listés dans le tableau 5.2 ayant fait l'objet d'une mesure. A ce stade, nous connaissons les taux de capture expérimentaux et simulés en fonction du temps de détection. Nous pouvons donc passer à la comparaison systématique des résultats simulés avec les mesures sur les échantillons.

Chapitre 6

Analyse des expériences de capture : comparaison avec les résultats des simulations

Dans ce chapitre, nous allons discuter de la comparaison des résultats expérimentaux obtenus sur plusieurs éléments avec les résultats obtenus par simulation à partir de trois bases de données. Les caractéristiques de ces échantillons sont détaillées dans le tableau 5.2. Tous les taux de capture ont été calculés en utilisant la base de données JENDL3.2 pour le plomb, en accord avec les résultats du chapitre 4.

Toutes les expériences et tous les calculs de taux de réaction de capture ont été analysés suivant la méthode détaillée au chapitre 5 [54, 55].

6.1 Conversion en énergie des spectres expérimentaux et simulés par la relation E-T

Nous avons pu remarquer déjà que le flux de neutrons diminue très rapidement en fonction du temps dans le massif de plomb. Le taux de réaction de capture diminue en dehors des résonances et on observe notamment une forte diminution pour les énergies inférieures à 1 eV. La région d'énergie d'intérêt est $0,5 \text{ eV} < E_n < 30 \text{ keV}$. D'après $E = \frac{K}{(t+t_0)^2}$ (cf. eq. (2.10)), la gamme des temps de ralentissement associée est $1,9 \text{ } \mu\text{s} < T_r < 580 \text{ } \mu\text{s}$. Les paramètres fondamentaux K et t_0 du massif de plomb sont ceux fixés dans la section 4.2.2.

La région d'énergie sur laquelle nous allons le plus souvent discuter les résultats est située entre 200 eV et 30 keV. Cette gamme d'énergie correspond aux temps de détection t_r compris entre 1,9 μs et 29 μs . Il est usuel de présenter les sections efficaces en fonction de l'énergie. Bien que nous ne déterminions pas les sections efficaces de capture mais les taux de réaction en fonction du temps, il est apparu plus aisé de discuter les taux de réaction de capture en fonction de l'énergie.

S'il est fait l'hypothèse d'une relation univoque liant l'énergie E du neutron à son temps de ralen-

tissement t_r , le nombre de captures se produisant dans l'intervalle d'énergie dE est égal au nombre de captures se produisant dans l'intervalle de temps dt correspondant. Le spectre de taux de réaction de capture $n_{(n,\gamma)}(E)$ en fonction de l'énergie est donc relié au spectre en temps $n_{(n,\gamma)}(t)$ de la façon suivante :

$$n_{(n,\gamma)}(E) = \frac{dt}{dE} n_{(n,\gamma)}(t) \quad (6.1)$$

Le pas dt utilisé pour le spectre en temps est fixé par le pas de l'acquisition soit 100 ns. Pour la représentation des taux de réaction en fonction de l'énergie, le pas dE est défini par un nombre de points choisis par l'utilisateur et distribués linéairement sur une échelle logarithme entre deux valeurs extrêmes en énergie.

Cette procédure est appliquée de façon identique aux taux de réaction de capture expérimentaux et simulés. Une illustration en a déjà été faite lors de la validation du flux de neutrons par les taux de réaction sur l'or (cf fig 4.28).

La représentation en fonction de l'énergie présente deux avantages. Le premier est de permettre d'identifier rapidement les résonances de capture expérimentales pour les comparer avec les valeurs données dans les bases, d'observer l'élargissement des résonances et les effets d'auto-absorption dans celles-ci. Le deuxième avantage est de présenter les taux de réaction de capture à hautes énergies dans la région des résonances non résolues avec la même lisibilité que dans la zone d'énergie des résonances résolues ($E_n < 200 \text{ eV}$).

6.2 Principes de comparaison

Nous allons étudier pour chaque échantillon, l'accord entre l'expérience et les simulations utilisant les différentes bases de données disponibles pour l'élément considéré. Les bases de données qui seront comparées sont ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2. Toutes les simulations concernant l'ensemble des autres matériaux de la simulation utilisent les bases de données choisies dans la section 2.2.3. Certains corps ont pu faire l'objet de mesures sur plusieurs épaisseurs. Nous présenterons les enseignements qui peuvent être tirés des effets d'auto-absorption dans ces échantillons d'épaisseur variable.

Les rapports des spectres simulés et expérimentaux sont effectués. Ces rapports permettent de connaître rapidement les régions d'énergie où la description du taux de réaction utilisant une certaine base de données n'est pas en accord avec l'expérience. Un désaccord de la base de données avec l'expérience sera considéré comme significatif quand le rapport dépassera plus ou moins 5% dans la zone d'énergie où le rapport est calculé (cf. fig. 6.1).

Cette limite de 5% est justifiée par la limite supérieure donnée par des variations éventuelles de l'efficacité de détection (cf. section 5.1.8). D'autre part, nous avons vu que le flux de neutrons expérimental est mieux décrit par la base de données JENDL3.2 du plomb que par ENDF/B-VI. Mais un écart, bien que faible, subsiste avec la base JENDL3.2 du plomb (cf section 4.2.2). Les résonances de capture des spectres simulés sont donc légèrement décalées par rapport aux positions déterminées

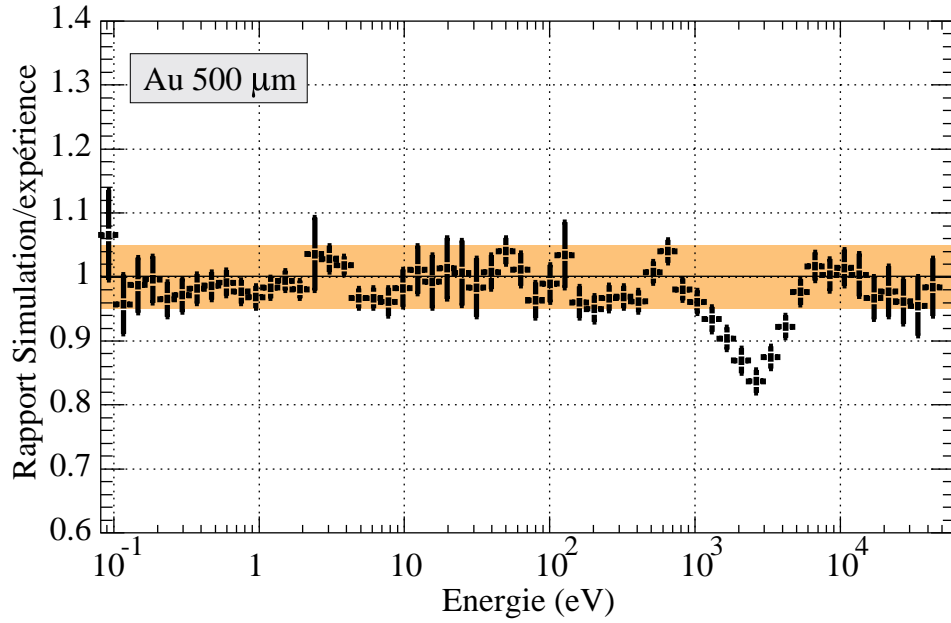


FIG. 6.1 – Exemple du rapport du taux de capture simulé et du taux de capture expérimental pour l'échantillon de 500 μm d'or.

expérimentalement (cf fig 4.15). Cela induit donc sur les rapports des taux de capture simulés sur expérimental une incertitude, qui reste néanmoins inférieure à 5%.

Enfin, pour les matériaux, dans les régions d'énergie où aucune base de données ne présente un accord suffisant avec l'expérience, il est proposé une table de correction pour la section efficace de capture. Les facteurs de correction n'ont, comme nous le verrons, une réelle signification que dans les zones d'énergie où la section efficace de capture à modifier est décrite par des résonances dans les bases de données. En effet, dans ces régions d'énergie, les phénomènes d'auto-absorption doivent logiquement être bien traités par la simulation. Dans les régions d'énergie où une correction est proposée et dans laquelle la description de la section efficace de capture n'est pas donnée par des résonances, les facteurs de correction n'ont de sens que pour les faibles épaisseurs d'échantillon. Néanmoins, nous pouvons faire remarquer que pour l'ensemble de nos échantillons, dans les zones d'énergie où la section efficace de capture n'est pas décrite par des résonances, l'auto-absorption est faible. Les résultats des calculs avec la base de données modifiée seront présentés dans ce contexte. La correction est appliquée à la section efficace de capture, la section efficace totale est maintenue constante (celle-ci est généralement supposée correcte). Ainsi, les sections efficaces partielles sont donc aussi corrigées, nous pouvons faire remarquer qu'au-dessous de 30 keV, seule la section efficace de diffusion est concernée. La correction ne sera proposée que dans les cas où un facteur d'échelle est applicable. Lorsque les désaccords observés entre l'expérience et les simulations sont trop importants, aucune table de correction n'est proposée. Nous indiquons alors que les bases de données ne sont pas vraiment exploitables et qu'une mesure doit être refaite après une éventuelle réévaluation des données existantes.

6.3 Résultats concernant les matériaux de référence

6.3.1 Résultats avec les échantillons d'or

La section efficace de capture de l'or est très bien connue dans la gamme d'énergie qui nous est accessible. Ce matériau est d'ailleurs très fréquemment utilisé comme référence dans de nombreuses expériences de mesure de sections efficaces. Nous l'avons beaucoup utilisé dans cette expérience pour la compréhension des phénomènes physiques dans le massif de plomb. Les mesures sur les échantillons d'or ont été très utiles pour toute la procédure d'analyse des données, aussi bien expérimentales que simulées.

L'ensemble des résultats de taux de capture en fonction de l'énergie des neutrons sont regroupés sur la figure 6.2. Trois épaisseurs d'échantillon ont été mesurés : 125 μm , 500 μm et 1250 μm . Les simulations avec les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2 ont produit les mêmes résultats. Seuls les calculs utilisant la base ENDF/B-VI de l'or sont donc présentés. Nous rappelons que l'évaluation de l'or pour la base de données JENDL3.2 n'existe pas.

Nous pouvons observer un très bon accord sur une très large gamme d'énergie entre 0,05 eV et 30 keV pour les différentes épaisseurs. Les deux premières résonances à 4,9 eV et 60 eV sont parfaitement identifiées. Compte tenu de la faible résolution en énergie du bloc de plomb, nous ne pouvons pas séparer les résonances existant à plus haute énergie, mais le calcul reproduit bien les variations de la section efficace de capture (cf fig A.2(a)). Nous pouvons observer aussi que les phénomènes d'auto-absorption des neutrons sont particulièrement bien pris en compte par le code de calcul MCNP. La section efficace vaut 27000 barns dans la résonance à 4,9 eV et le libre parcours moyen des neutrons dans l'or pour cette résonance est de 6 μm .

Un désaccord est trouvé pour les trois épaisseurs entre l'expérience et la simulation dans la région d'énergie entre 2 keV et 5 keV. Ce désaccord est de l'ordre de 10% à 15% pour les trois épaisseurs. La simulation propose un taux de capture inférieur à l'expérience. Lors de l'étude du flux de neutrons dans le bloc de plomb, il n'a pas été trouvé de désaccord entre le calcul et les taux de réaction (n,p) sur hélium 3 et de fission sur l' ^{233}U dans cette gamme d'énergie. De plus, les spectres expérimentaux ont été corrigés du temps mort dans cette région du spectre suivant la procédure déterminée dans la section 4.3.1. Enfin, il a aussi été montré que l'efficacité du détecteur CeF_3 ne variait pas de plus de 5% sur l'ensemble de la zone d'énergie étudiée.

Le tableau 6.1 résume, pour la base ENDF/B-VI, les régions d'énergie où la simulation est en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Ce désaccord systématiquement observé entre les trois épaisseurs de cible mesurées avec les simulations met donc en évidence une sous-estimation de la section efficace de capture de l'or dans la région d'énergie entre 2 keV et 5 keV de l'ordre de 10%. Le tableau 6.2 présente dans la région entre 1 keV et 7 keV les écarts relatifs entre l'expérience et la simulation pour chacune des épaisseurs ainsi que les facteurs de correction proposés. Dans cette région d'énergie, la section efficace est suffisamment faible pour que les effets d'auto-absorption soient faibles pour l'échantillon de 1250 μm . Le

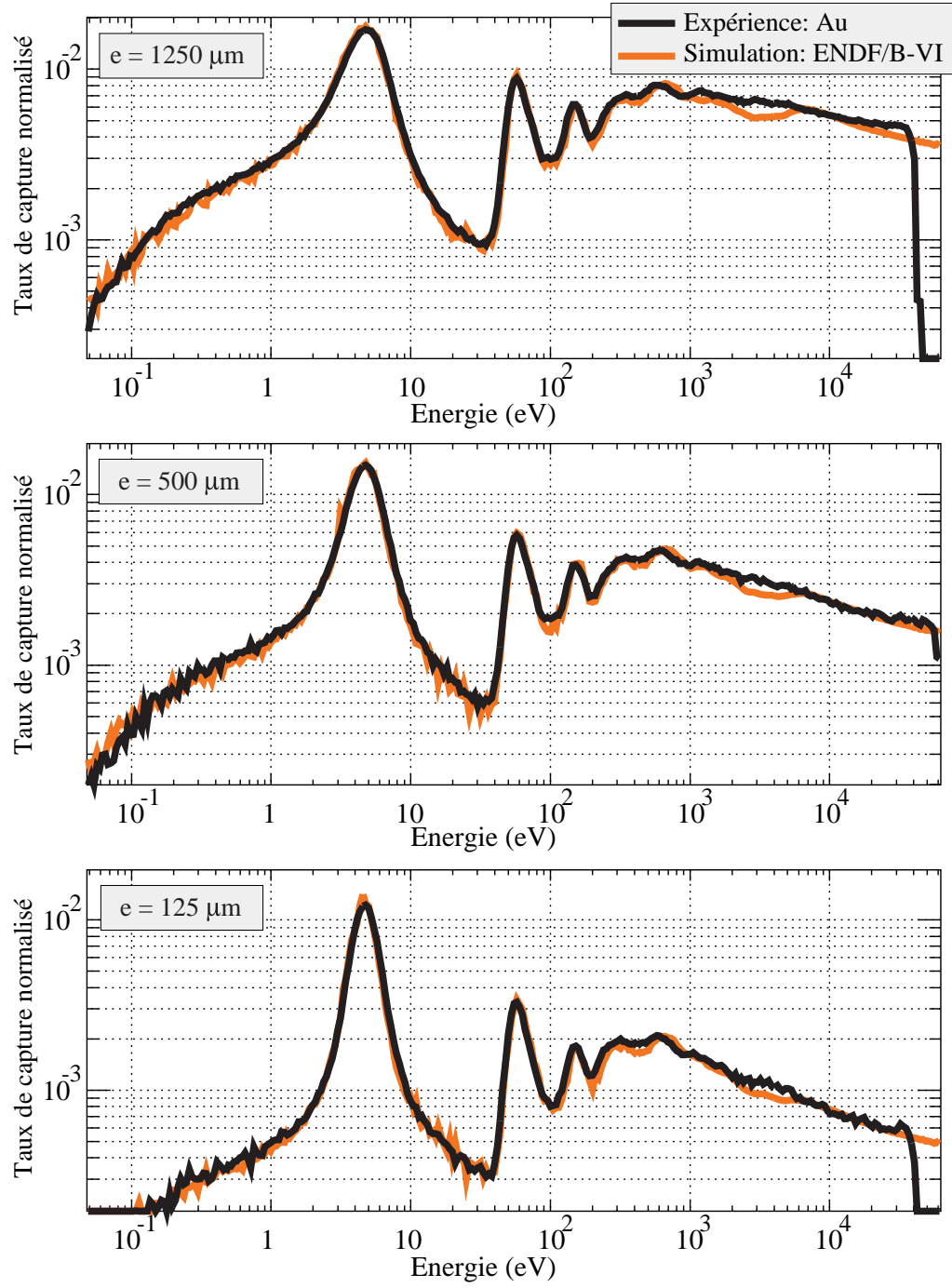


FIG. 6.2 – *Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons d' ^{197}Au pour les épaisseurs 125 μm , 500 μm et 1250 μm mesurés et simulés avec la base de données ENDF/B-VI pour l'or.*

Région d'énergie	Base: ENDF/B-VI
0,1 eV < E < 2 keV	accord meilleur que 5%
2 keV < E < 5 keV	désaccord de l'ordre de 10% à 15% proposition d'une correction
5 keV < E < 30 keV	accord de l'ordre de 5%

TAB. 6.1 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre la simulation utilisant la base de données ENDF/B-VI de l'or et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

libre parcours moyen des neutrons dans l'or est supérieur à l'épaisseur de toutes les cibles. Les effets d'auto-absorption n'ont pas d'influence sur le taux de réaction et n'ont pas d'effet sur le désaccord dans cette région. C'est pour cette raison que les désaccords sont du même ordre de grandeur pour les trois épaisseurs. Les facteurs de correction proposés dans le tableau 6.2 pour chaque canal d'énergie tiennent compte des écarts relatifs entre les expériences et les simulations pour les trois épaisseurs.

Energie (eV)	$\langle \sigma_{(n,\gamma)}(E) \rangle$ (barns)	$\frac{\Delta \sigma \phi_{(C-E)}}{\sigma \phi_E}$			Facteur de correction
		e=125 μ m	e=500 μ m	e=1250 μ m	
916.27 < E < 1156.89	7.35	-4.37e-02	-3.99e-02	-8.74e-02	1.00
1156.89 < E < 1460.68	5.55	-4.81e-02	-5.69e-02	-5.22e-02	1.05
1460.68 < E < 1844.26	4.10	-3.89e-02	-8.57e-02	-7.42e-02	1.07
1844.26 < E < 2328.56	2.64	-1.12e-01	-1.28e-01	-1.25e-01	1.12
2328.56 < E < 2940.04	2.39	-1.43e-01	-1.61e-01	-1.76e-01	1.16
2940.04 < E < 3712.10	1.97	-1.47e-01	-1.25e-01	-1.35e-01	1.14
3712.10 < E < 4686.89	1.99	-1.27e-01	-1.00e-01	-8.68e-02	1.11
4686.89 < E < 5917.67	1.89	-3.67e-03	-1.38e-02	2.88e-02	1.00
5917.67 < E < 7471.65	1.57	8.52e-03	3.39e-02	5.62e-02	1.00

TAB. 6.2 – *Proposition de table de correction de la section efficace de capture de l'or de la base de données ENDF/B-VI dans la région d'énergie 2 keV-5 keV. La section efficace de capture moyenne, la différence relative entre la simulation (C) et l'expérience (E) pour chaque épaisseur et le facteur de correction final sont donnés entre deux valeurs d'énergie.*

Nous pouvons faire remarquer que la section efficace de capture de l'or est décrite par une structure en résonances en-dessous de 5 keV (cf. fig. A.2(a)). L'expérience et la simulation présentent d'ailleurs un accord pour les trois épaisseurs dans cette région. Comme nous avons pu le voir, le désaccord existe donc dans une zone d'énergie où des résonances sont définies. Nous pouvons donc penser à juste titre que le niveau moyen de la section efficace est insuffisant.

Cette table de correction a été appliquée à la section efficace de capture de l'or extraite de la base de données ENDF/B-VI. Celle-ci a été multipliée par les facteurs proposés dans le tableau (6.2). La figure 6.3 présente la superposition des taux de capture expérimentaux et simulés avec la base de données ENDF/B-VI non modifiée (ligne pointillée), les résultats des calculs avec la section efficace

modifiée ont été rajoutés (ligne grise). La figure 6.4 présente un grossissement de ces spectres dans la région d'énergie comprise entre 1 keV et 10 keV et encadrant le désaccord.

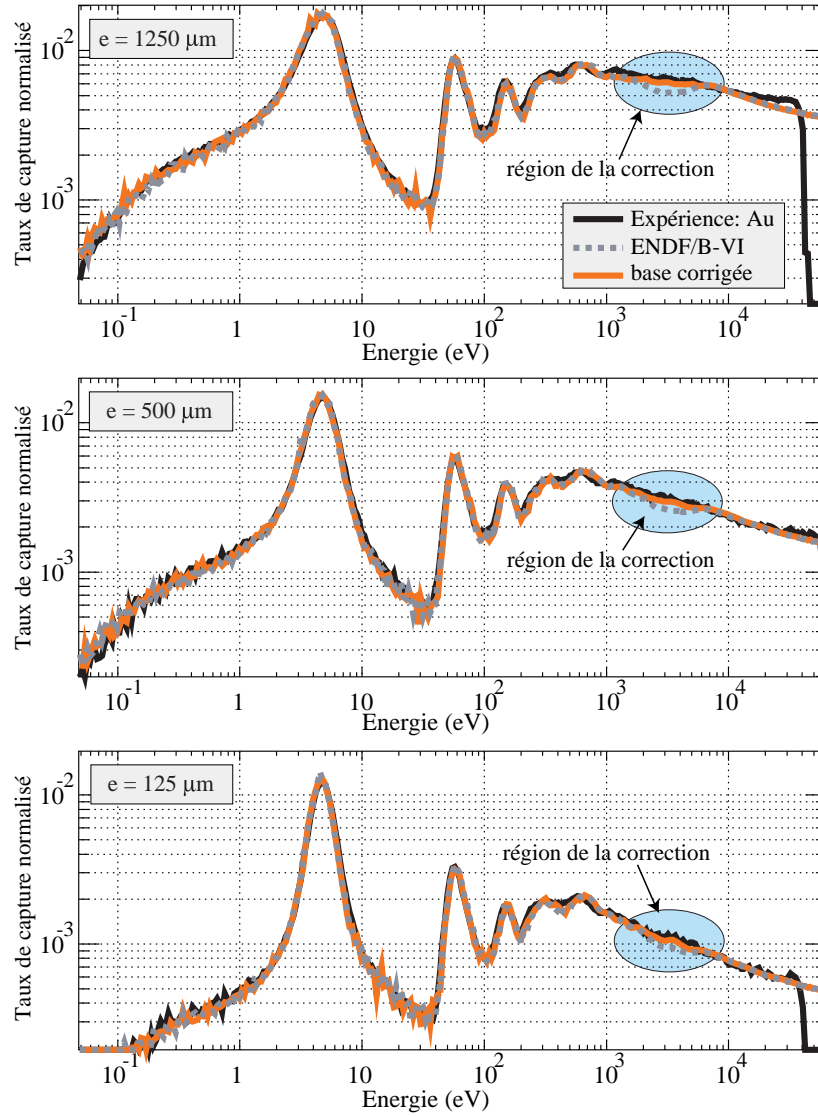


FIG. 6.3 – *Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d' ^{197}Au mesurés et simulés avec la base de données ENDF/B-VI pour l'or et modifiée avec les facteurs de correction proposés.*

La correction de la section efficace entraîne un accord des taux de réaction de capture expérimentaux et calculés pour les trois épaisseurs dans la région d'énergie entre 2 keV et 5 keV. Nous pouvons conclure que dans le cas de l'or, pour les épaisseurs mesurées, la méthode appliquée pour les facteurs de correction est satisfaisante. L'examen des résultats expérimentaux présents dans la base de données EXFOR montre que cette correction est tout à fait compatible avec ceux-ci (cf. fig. A.3).

L'excellent accord observé entre les expériences et les simulations, mis à part la région entre 2 keV et 5 keV, constitue une validation de la méthode expérimentale, d'analyse et de simulation.

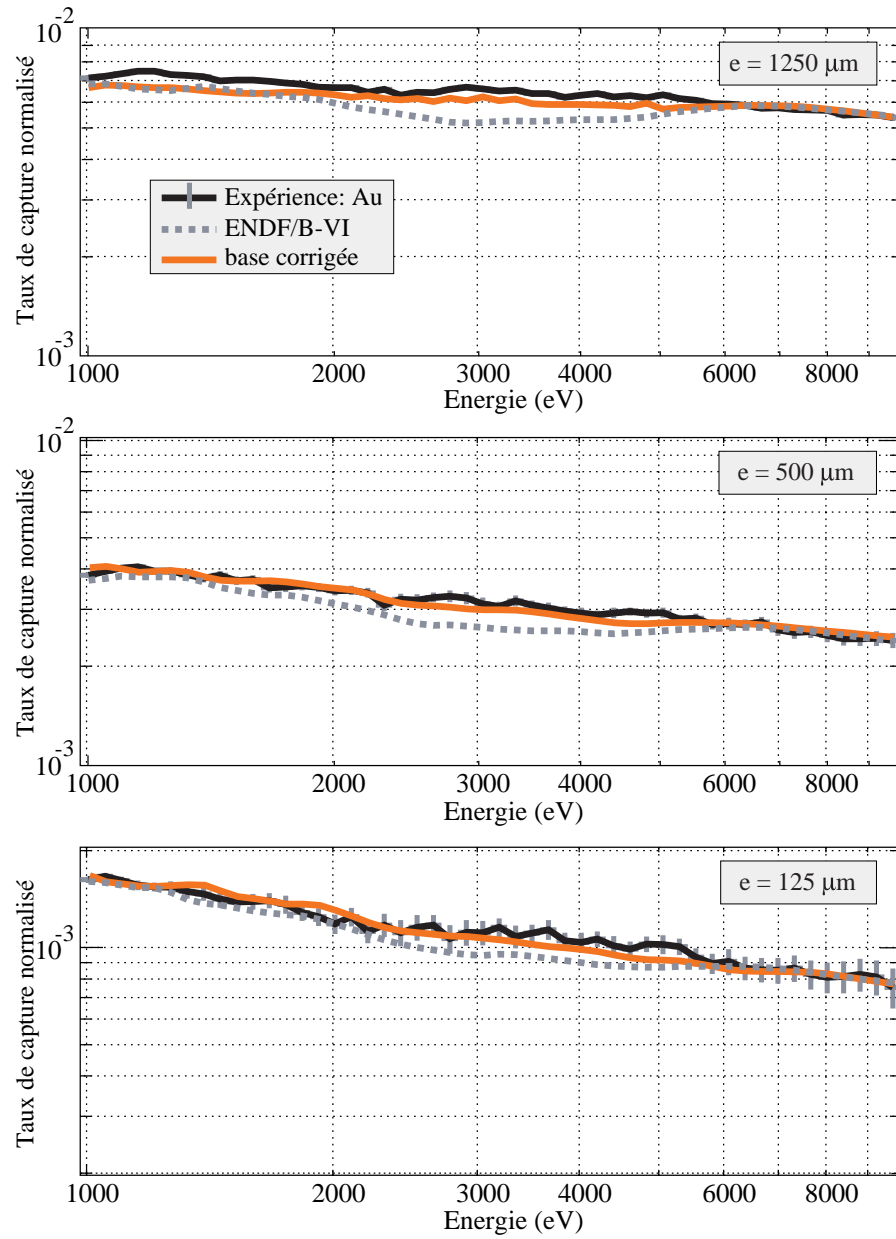


FIG. 6.4 – Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d' ^{197}Au mesurés et simulés avec la base de données ENDF/B-VI pour l'or et modifiée avec les facteurs de correction proposés entre 1 keV et 10 keV.

6.3.2 Résultats avec les échantillons d'argent

Les résultats des taux de capture sur les échantillons d'argent de 100 μm , 300 μm et 1200 μm d'épaisseur sont regroupés sur la figure 6.5. Comme dans le cas de l'or, ceux-ci sont présentés en fonction de l'énergie des neutrons. Trois bases de données ont pu faire l'objet de simulations: ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2. Pour chacune de ces trois bases de données, les sections efficaces de l'argent sont la pondération des isotopes 107 et 109 de l'argent. Nous avons vérifié dans le cas de la base de données JENDL3.2 que la section efficace de capture de l'argent naturel est identique à celle de la composition. Dans les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2, les fichiers au format ENDF de l'argent naturel n'existent pas¹. Une évaluation de l'argent au format ENDF est néanmoins disponible par défaut pour le code MCNP [22]. La section efficace de capture est similaire à celle produite par la composition des isotopes 107 et 109 de la base JEF2.2 et nous avons vérifié que les taux de capture étaient bien identiques. La comparaison de cette section efficace de capture disponible par défaut avec celle composée des isotopes 107 et 109 de la base ENDF/B-VI montre en revanche d'importantes différences comme on peut l'observer sur la figure A.4.

La figure 6.6 présente un grossissement de ces spectres dans la région d'énergie comprise entre 100 eV et 60 keV.

Nous pouvons tout d'abord remarquer l'excellent accord des trois bases de données avec les expériences pour les trois épaisseurs d'échantillon entre 0,1 eV et 500 eV. Les effets d'auto-absorption sont très bien reproduits par le code de simulation et les bases de données.

Nous pouvons aussi remarquer que la base de données ENDF/B-VI décrit incorrectement le taux de capture expérimental, le désaccord est supérieur à 15%, au-dessus de 600 eV. Le creux très important observé autour de 2 keV traduit la structure en résonances de la section efficace de cette base (cf. fig. A.5(a)), la densité de résonances est insuffisante, les paramètres des résonances sont aussi éventuellement non satisfaisants, enfin, le niveau moyen de la section efficace est plus faible que ceux extraits de JENDL3.2 et JEF2.2. Les trois bases de données présentent un déficit de l'ordre de 15% entre 600 eV et 1 keV. Les trois sections efficaces présentent toutes une structure en résonances dans cette zone, une sous-estimation de la section efficace moyenne de capture en est sans doute la cause.

Nous pouvons faire remarquer que la description en résonances de la section efficace de la base JEF2.2 s'arrête à 1 keV, le niveau moyen proposé de la section efficace jusqu'à 4 keV entraîne probablement la surestimation du taux de capture observée. Au-dessus de 4 keV, cette base présente un bon accord avec notre expérience. Les simulations utilisant JENDL3.2 estiment bien le taux de capture entre 1 keV et 3 keV. Au-dessus de 4 keV, la simulation du taux de réaction utilisant cette base de données montre un désaccord de l'ordre de 15%.

Le tableau 6.3 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Dans le cas de l'argent, nous déconseillons l'utilisation de la base de données ENDF/B-VI en raison du désaccord trop important observé sur une grande gamme d'énergie ($E_n > 600 \text{ eV}$). Bien que la base

1. Les fichiers au format ENDF sont disponibles sur le site du LANL: <http://t2.lanl.gov/>

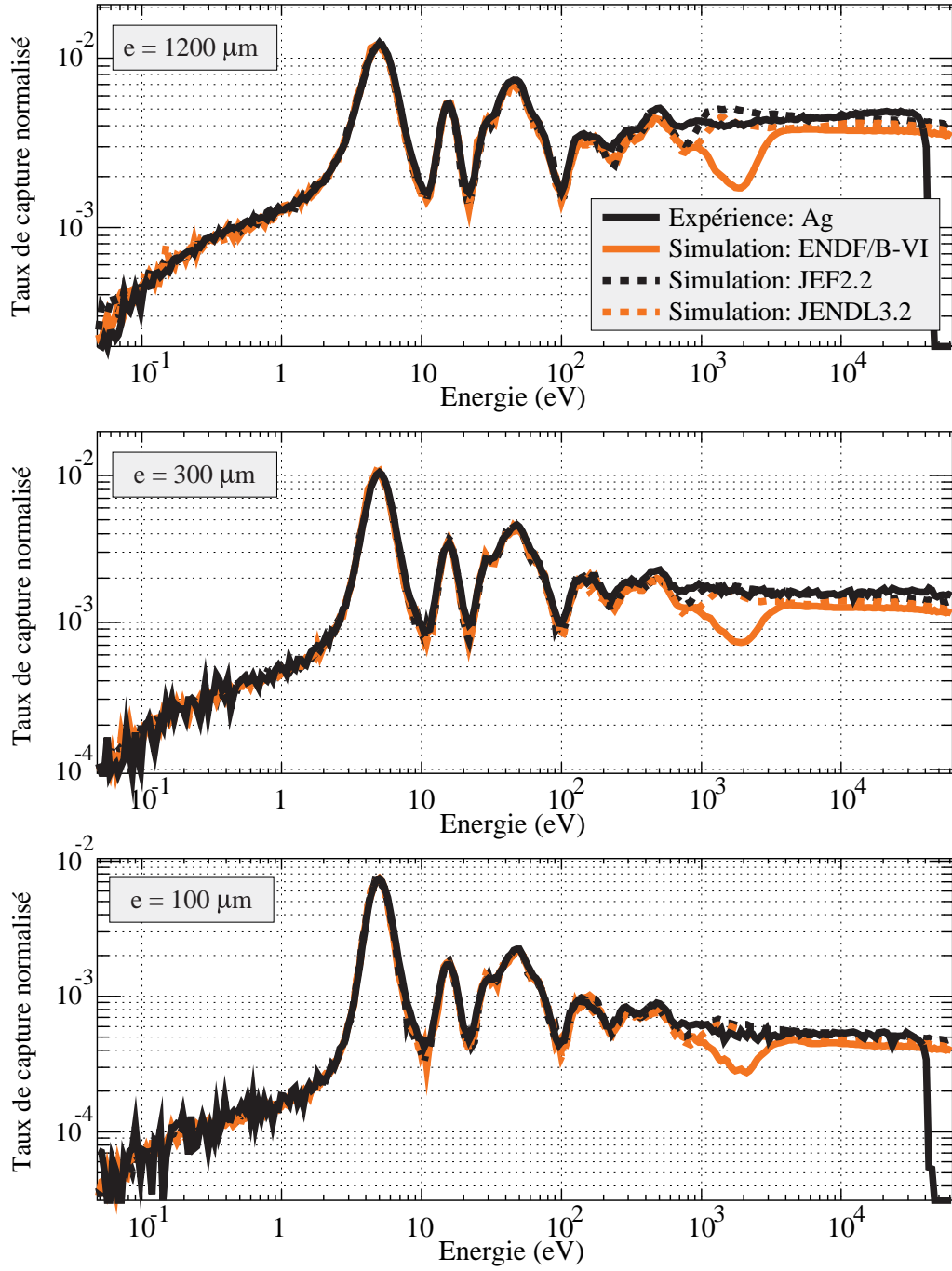


FIG. 6.5 – Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons d'argent d'épaisseurs $100 \mu\text{m}$, $300 \mu\text{m}$ et $1200 \mu\text{m}$ mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2.

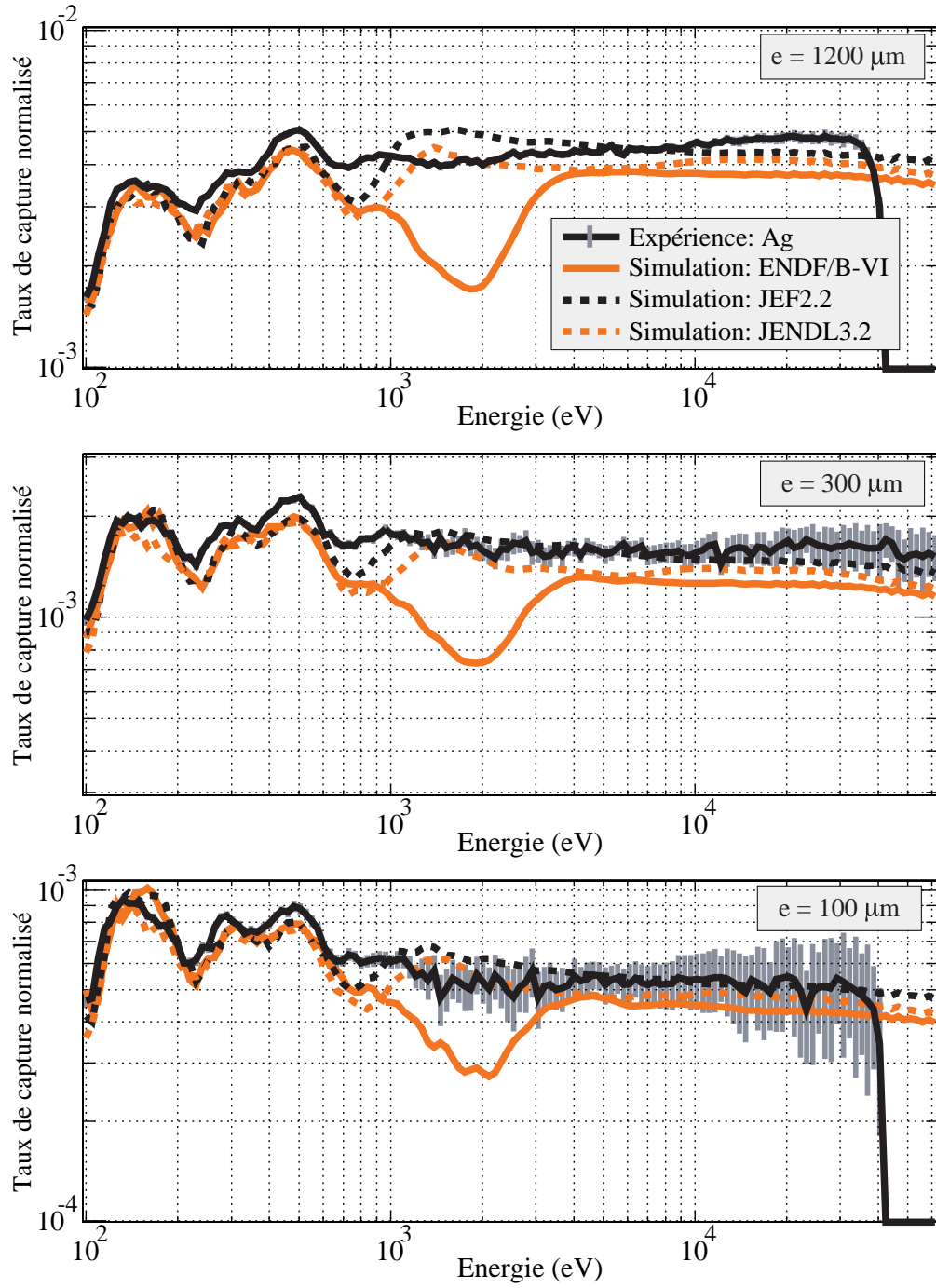


FIG. 6.6 – Taux de capture normalisés sur les échantillons d'argent d'épaisseurs $100 \mu\text{m}$, $300 \mu\text{m}$ et $1200 \mu\text{m}$ mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2 entre 100 eV et 60 keV .

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JEF2.2	JENDL3.2
$0,1 \text{ eV} < E < 500 \text{ eV}$	accord meilleur que 5%	accord meilleur que 5%	accord meilleur que 5%
$600 \text{ eV} < E < 1 \text{ keV}$	sous-estimation de l'ordre de 15%	sous-estimation de l'ordre de 15%	sous-estimation de l'ordre de 15%
$1 \text{ keV} < E < 3 \text{ keV}$	sous-estimation de l'ordre de 40%	surestimation de l'ordre de 15%	accord de l'ordre de 10%
$4 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	sous-estimation supérieure à 15%	accord de l'ordre de 5%	sous-estimation de l'ordre de 10%

TAB. 6.3 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données de l'argent et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

de données JEF2.2 soit celle dont la description de la section efficace de capture par des résonances est la moins importante, nous en préférons l'utilisation par rapport à la base JENDL3.2 dans le cas où l'auto-absorption peut être négligée. Nous ne proposons pas de table de correction pour la base JEF2.2 en raison des écarts mentionnés ci-dessus. En effet, ceux-ci ne sont pas de même ampleur pour les différentes épaisseurs mesurées et suggèrent peut être la présence de résonances qu'il est impossible d'identifier par cette expérience.

6.3.3 Résultats avec les échantillons de tantale

Dans le cas du tantale, nous avons effectué des mesures pour trois échantillons d'épaisseurs $100 \mu\text{m}$, $200 \mu\text{m}$ et $3000 \mu\text{m}$. Les résultats des taux de capture expérimentaux et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2 sont regroupés sur la figure 6.7.

Nous pouvons tout d'abord observer un accord à mieux que 5% entre les simulations utilisant les trois bases de données entre $0,1 \text{ eV}$ et 300 eV . Nous pouvons faire remarquer que les résultats pour l'épaisseur de $3000 \mu\text{m}$ illustrent parfaitement la très bonne prise en compte dans cette gamme d'énergie des phénomènes d'auto-absorption par le code MCNP. La comparaison des taux de capture dans la résonance à $4,28 \text{ eV}$ du tantale montre une forte réduction du taux de capture expérimental relatif entre l'épaisseur de $200 \mu\text{m}$ et celle de $3000 \mu\text{m}$, ce dont les simulations rendent parfaitement compte. Dans les résonances, les neutrons sont dans tous les cas absorbés. Par contre, l'auto-absorption diminue quand la section efficace diminue, mais en relatif, plus l'épaisseur est grande, plus le taux de capture augmente.

De plus, nous pouvons observer, pour les épaisseurs de $100 \mu\text{m}$ et $200 \mu\text{m}$, que les taux de capture simulés avec les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2 décrivent très bien les taux de capture expérimentaux au-dessus de 300 eV . Par contre, les taux de capture avec ces bases de données présentent un désaccord supérieur à 30% avec l'expérience pour l'épaisseur $3000 \mu\text{m}$. L'observation de ces sections efficaces de capture extraites de ces deux bases de données (cf. fig. A.5(b)) montrent que celles-ci ne sont plus décrites par une structure en résonances au-dessus de 300 eV . A ces énergies,

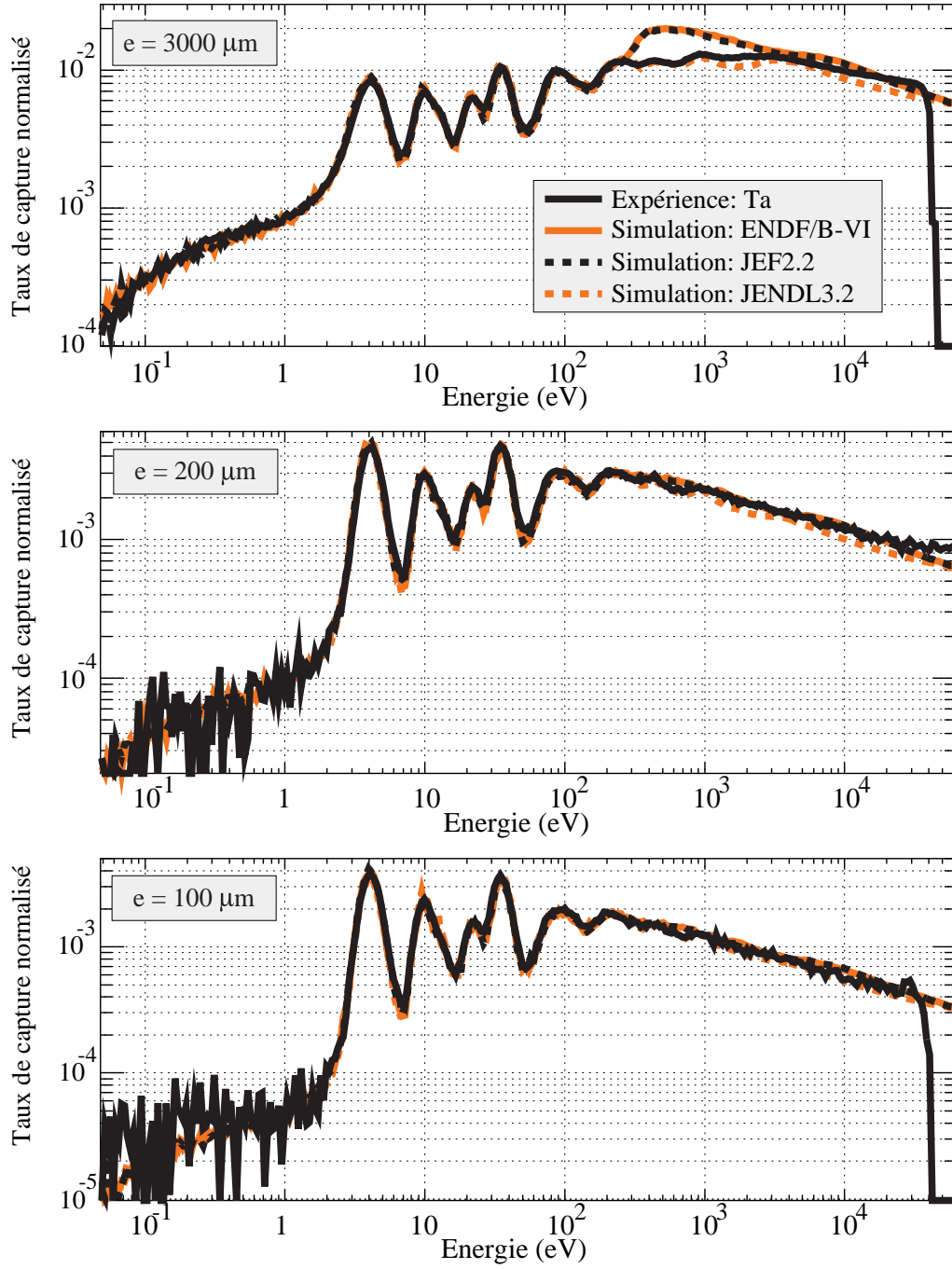


FIG. 6.7 – Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons de tantale d'épaisseurs 100 μm , 200 μm et 3000 μm mesurés (ligne noire) et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI (ligne grise), JEF2.2 (ligne discontinue noire) et JENDL3.2 (ligne discontinue grise).

l'effet d'auto-absorption dans l'échantillon de $3000 \mu\text{m}$ d'épaisseur est très mal pris en compte. Ce désaccord n'est pas dû à une mauvaise prise en compte de ces phénomènes par le calcul mais bien à une description insuffisante de la section efficace dans les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2.

Les taux de capture simulés avec la base de données JENDL3.2, en raison d'une description avec une structure en résonances jusqu'à de 2 keV, rendent bien compte des effets d'auto-absorption importants entre 300 eV et 2 keV. Néanmoins, une sous-estimation du taux de capture est visible au-dessus de 1 keV. Les phénomènes d'auto-absorption étant bien décrits par le code lorsqu'il utilise la base de données JENDL3.2, nous proposons une table de correction pour celle-ci.

Le tableau 6.4 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JEF2.2	JENDL3.2
$0,1 \text{ eV} < E < 300 \text{ eV}$	accord meilleur que 5%	accord meilleur que 5%	accord meilleur que 5%
$300 \text{ eV} < E < 3 \text{ keV}$	désaccord	désaccord	accord: $E < 1 \text{ keV}$ désaccord: $E > 1 \text{ keV}$
$3 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	désaccord de l'ordre de 10%	désaccord de l'ordre de 10%	sous-estimation de l'ordre de 15%: table de correction

TAB. 6.4 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du tantale et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

Le tableau 6.5 regroupe les écarts observés entre les résultats des simulations utilisant la base JENDL3.2 pour les trois épaisseurs et les facteurs de correction proposés pour la section efficace de capture au-dessus de 300 eV.

Cette table de correction a donc été appliquée à la section efficace de capture extraite de la base de données JENDL3.2 du tantale. Les simulations avec la section efficace de capture du tantale de JENDL3.2 modifiée ont été effectuées. La figure 6.8 présente les résultats de ces simulations comparés aux mesures des taux de capture pour les trois épaisseurs d'échantillon.

Sur la figure 6.9, nous pouvons observer l'effet de la modification de la section efficace de capture sur les taux de capture simulés. Un bon accord est alors observé entre les simulations et les expériences pour les trois épaisseurs d'échantillon.

Le cas du tantale nous a permis d'étudier avant tout l'effet directement observable d'une description insuffisamment détaillée des sections efficaces de capture dans les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2. Nous avons pu clairement mettre en évidence que ces bases de données pour le tantale conduisent à des résultats erronés au-dessus de 300 eV. C'est la comparaison des résultats obtenus pour différentes épaisseurs qui a permis de montrer cette insuffisance.

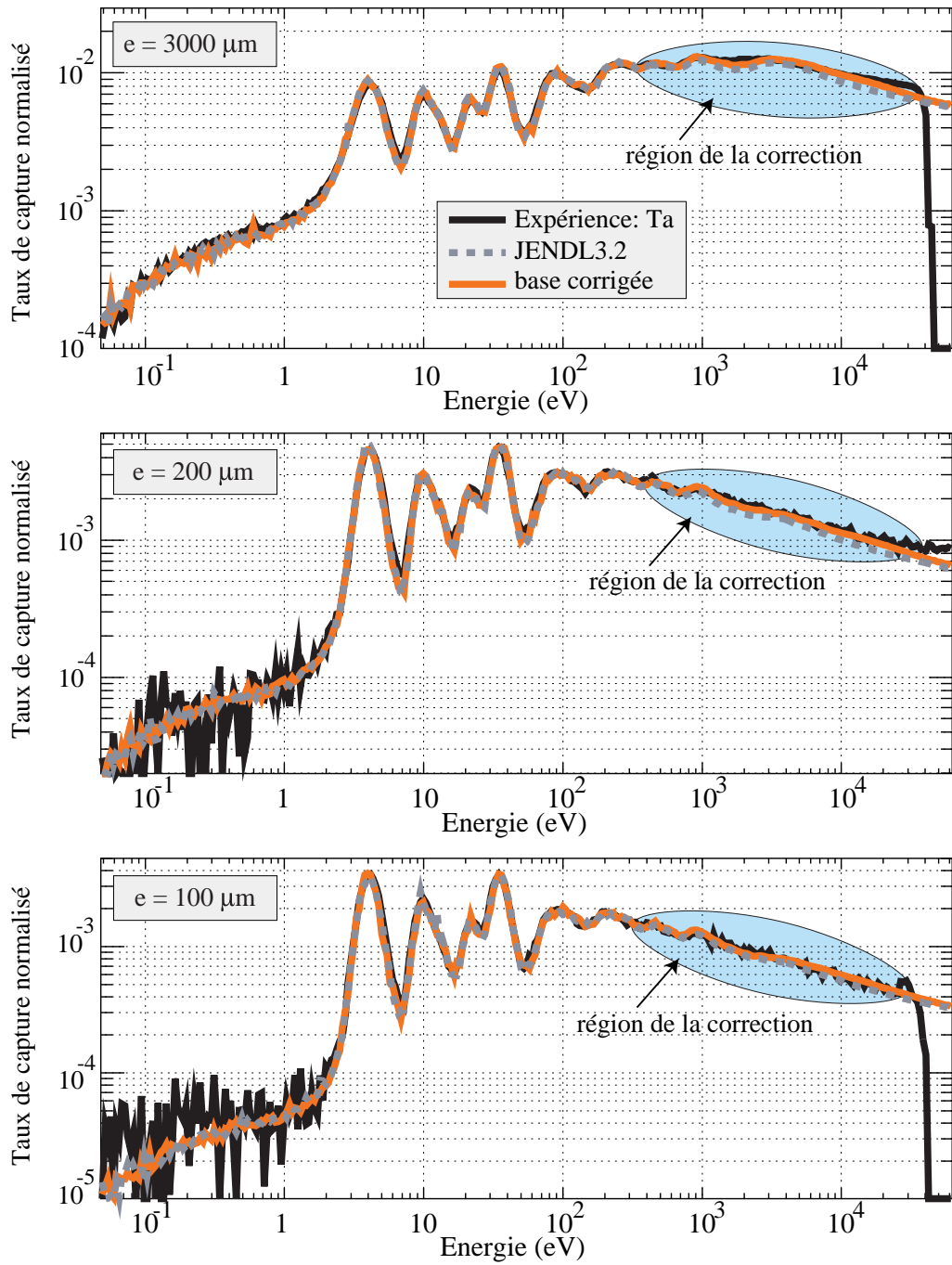


FIG. 6.8 – Taux de capture normalisés sur les trois échantillons de tantale mesurés et simulés avec la base de données JENDL3.2 et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés.

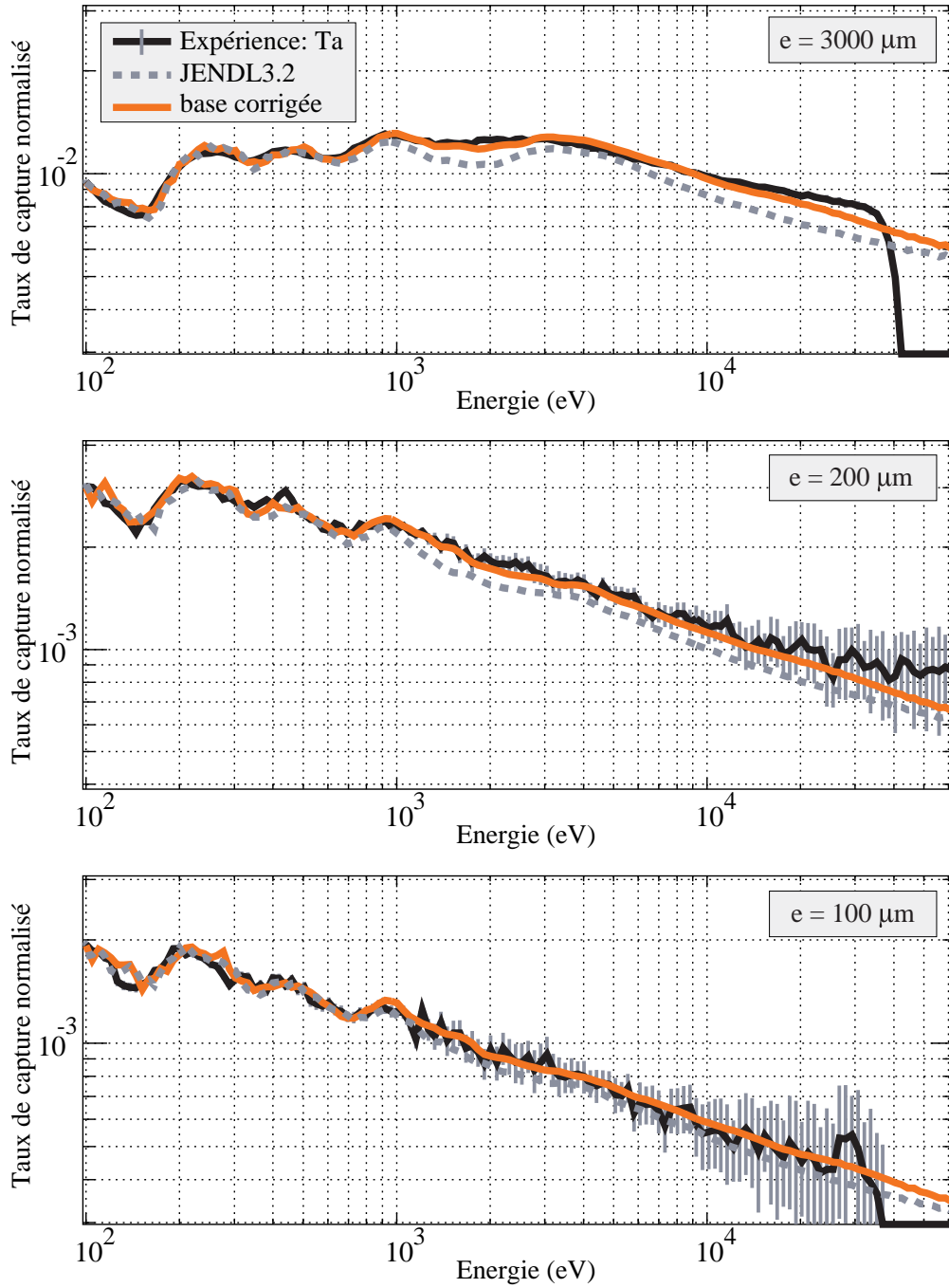


FIG. 6.9 – Taux de capture normalisés sur les trois échantillons de tantale mesurés et simulés avec la base de données JENDL3.2 et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés; observation entre 100 eV et 60 keV.

Energie (eV)	$\langle\sigma_{(n,\gamma)}(E)\rangle$ (barns)	$\frac{\Delta\sigma\phi_{(C-E)}}{\sigma\phi_E}$			Facteur de correction
		e=100 μ m	e=200 μ m	e=3000 μ m	
325.70<E<522.33	15.62	3.01e-05	-3.78e-02	-2.70e-02	1.00
522.33<E<837.68	10.56	-3.22e-02	-6.35e-02	-6.06e-02	1.05
837.68<E<1343.40	7.25	-7.19e-02	-1.40e-01	-1.29e-01	1.11
1343.40<E<2154.44	4.46	-1.01e-01	-1.33e-01	-9.47e-02	1.11
2154.44<E<3455.11	3.46	-5.52e-02	-1.02e-01	-4.22e-02	1.07
3455.11<E<5541.02	2.52	-5.39e-02	-1.17e-01	-7.73e-02	1.08
5541.02<E<8886.24	1.73	-6.55e-02	-1.54e-01	-1.27e-01	1.12
8886.24<E<14251.03	1.17	-9.49e-02	-1.77e-01	-1.67e-01	1.15
14251.03<E<22854.64	0.86	-1.47e-01	-1.96e-01	-1.92e-01	1.18

TAB. 6.5 – Proposition de table de correction de la section efficace de capture du tantale de la base de données JENDL3.2 dans la région d'énergie 300 eV-23 keV. La section efficace de capture moyenne, la différence relative entre la simulation (C) et l'expérience (E) pour chaque épaisseur et le facteur de correction final sont donnés entre deux valeurs d'énergie.

6.3.4 Résultats avec les échantillons d'indium

Les résultats de taux de capture sur les échantillons d'indium de 300 μ m, 500 μ m et 2000 μ m d'épaisseur sont regroupés sur la figure 6.10. Les trois bases de données habituelles ont fait l'objet de simulations (ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2).

Un excellent accord est observable pour les trois épaisseurs d'échantillon au-dessous de 1 keV. Les trois bases de données décrivent très bien les taux de capture mesurés. Nous pouvons parfaitement observer l'augmentation de l'auto-absorption entre les trois épaisseurs dans la résonance à 1,45 eV. Les taux de capture simulés utilisant la base de données ENDF/B-VI présentent une sous-estimation du taux de capture réel entre 1 keV et 2 keV. Au-dessus de 2 keV, les résultats obtenus avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 produisent une surestimation du taux de capture par rapport à l'expérience de l'ordre de 15%. Nous pouvons observer que les résultats simulés avec JEF2.2 donnent une sous-évaluation de 15% à 20% du taux de capture pour les trois épaisseurs au-dessus de 2 keV. Nous pouvons faire remarquer suite à l'observation des sections efficaces de capture extraites des trois bases de données (cf. fig. A.6(a)) que :

- les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI donnent une description avec une structure en résonances dont la limite supérieure est 2 keV,
- la section efficace extraite de la base JENDL3.2 estime un niveau moyen légèrement supérieur à celui de ENDF/B-VI entre 2 keV et 4 keV,
- la section efficace de capture de la base JEF2.2 est décrite par des résonances en dessous de 1 keV. Au-dessus de 2 keV, la valeur de la section efficace est environ 30% inférieure à celle de ENDF/B-VI.

Les remarques ci-dessus sont vérifiées par les simulations des taux de capture (cf. fig. 6.10).

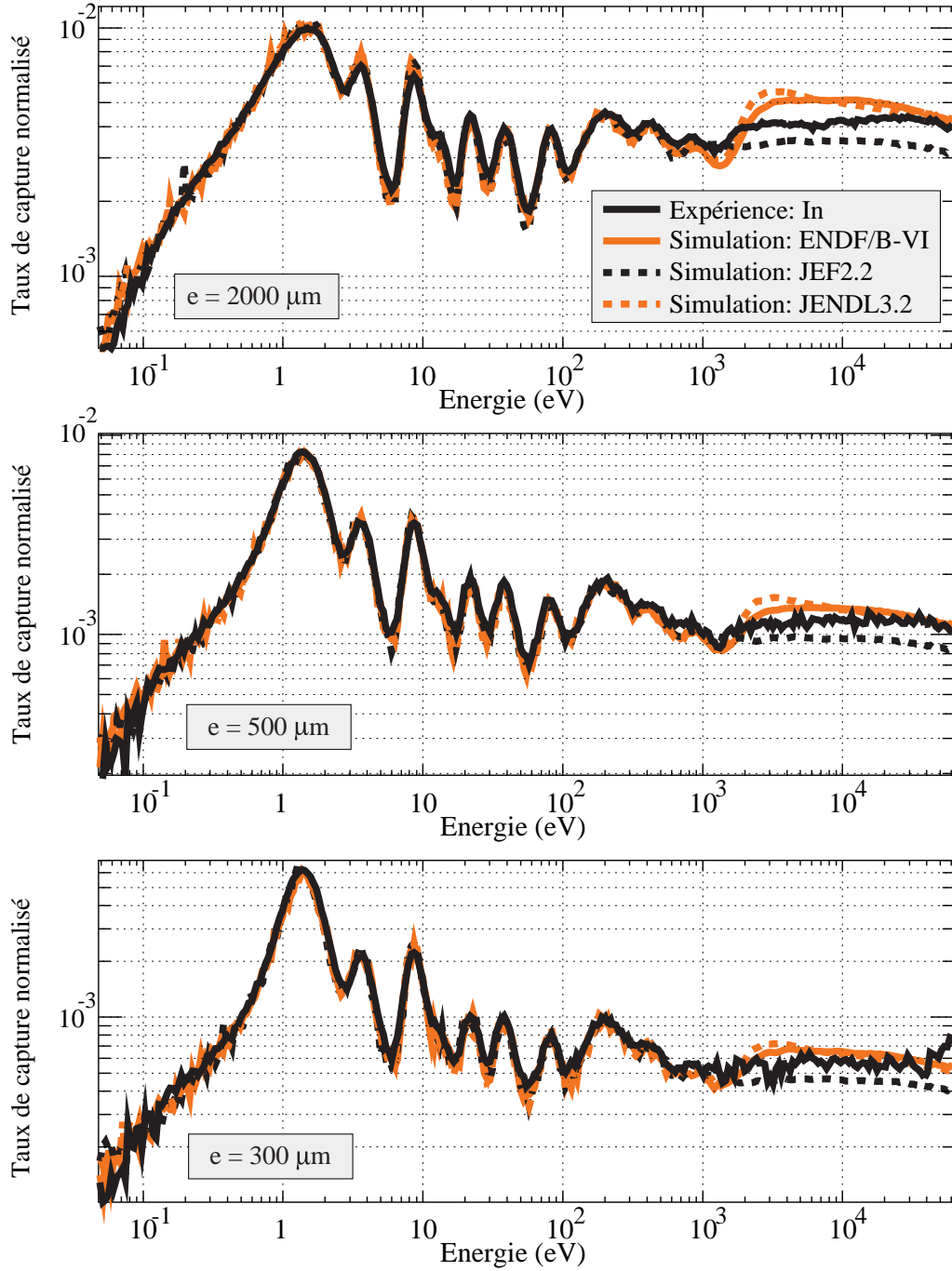


FIG. 6.10 – Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons d'indium d'épaisseurs 300 μm , 500 μm et 2000 μm mesurés (ligne continue noire) et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI (ligne continue grise), JEF2.2 (ligne discontinue noire) et JENDL3.2 (ligne discontinue grise).

Le tableau 6.6 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JEF2.2	JENDL3.2
$0,1 \text{ eV} < E < 1 \text{ keV}$	accord meilleur que 5%	accord meilleur que 5%	accord meilleur que 5%
$1 \text{ keV} < E < 2 \text{ keV}$	sous-estimation de l'ordre de 10%	accord	sous-estimation de l'ordre de 10%
$2 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	surestimation de l'ordre de 15%	sous-estimation de l'ordre de 10% correction	surestimation de l'ordre de 15%

TAB. 6.6 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données de l'indium et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

Le tableau 6.7 présente les écarts relatifs entre l'expérience et la simulation utilisant la base JEF2.2 pour chacune des épaisseurs entre 1,1 keV et 30 keV ainsi que les facteurs de correction pour la section efficace de capture pour la base JEF2.2. Le choix de la correction de JEF2.2 est motivé par la variation moins brutale des taux de réaction simulés à l'énergie de transition entre la zone des résonances résolues et la zone non résolue par rapport aux taux de réaction simulés avec ENDF/B-VI et JENDL3.2.

Cette table de correction a été appliquée sur la section efficace de capture de l'indium extraite de la base JEF2.2. La section efficace de capture a été multipliée dans chaque région d'énergie sujette à désaccord par les facteurs de correction proposés dans le tableau 6.7. Nous rappelons que la section efficace totale est maintenue constante lors de la modification de la section efficace de capture. La figure 6.11 présente la superposition des taux de capture expérimentaux pour chaque épaisseur d'échantillon d'indium et simulés avec la base de données JEF2.2 originale et modifiée. La figure 6.12 présente un grossissement de ces spectres dans la région d'énergie comprise entre 100 eV et 60 keV et encadrant le désaccord.

Nous pouvons observer le bon accord obtenu avec la base de données JEF2.2 modifiée entre 1 keV et 30 keV pour les trois épaisseurs d'échantillon.

Energie (eV)	$\langle\sigma_{(n,\gamma)}(E)\rangle$ (barns)	$\frac{\Delta\sigma\phi_{(C-E)}}{\sigma\phi_E}$			Facteur de correction
		e=300 μ m	e=500 μ m	e=2000 μ m	
1156.89<E<1460.68	1.92	1.69e-01	-5.33e-02	-6.70e-02	1.00
1460.68<E<1844.26	1.74	-8.78e-02	-1.28e-01	-1.51e-01	1.14
1844.26<E<2328.56	1.58	-1.29e-01	-1.65e-01	-1.60e-01	1.16
2328.56<E<2940.04	1.44	8.41e-02	-1.45e-01	-1.52e-01	1.15
2940.04<E<3712.10	1.33	-9.02e-02	-1.31e-01	-1.36e-01	1.13
3712.10<E<4686.89	1.24	-1.86e-01	-1.69e-01	-1.27e-01	1.15
4686.89<E<5917.67	1.15	-2.01e-01	-1.77e-01	-1.16e-01	1.15
5917.67<E<7471.65	1.07	-1.95e-01	-1.91e-01	-1.31e-01	1.16
7471.65<E<9433.71	1.00	-2.28e-01	-1.85e-01	-1.49e-01	1.17
9433.71<E<11911.00	0.91	-2.00e-01	-1.68e-01	-1.45e-01	1.16
11911.00<E<15038.84	0.84	-1.95e-01	-2.07e-01	-1.62e-01	1.18
15038.84<E<18988.04	0.77	-2.12e-01	-1.86e-01	-1.76e-01	1.18
18988.04<E<23974.29	0.70	-1.90e-01	-1.94e-01	-1.87e-01	1.19
23974.29<E<30269.95	0.62	-2.10e-01	-2.24e-01	-1.94e-01	1.21

TAB. 6.7 – Proposition de table de correction de la section efficace de capture de l'indium de la base de données JEF2.2 dans la région d'énergie 1 keV-30 keV. La section efficace de capture moyenne, la différence relative entre la simulation (C) et l'expérience (E) pour chaque épaisseur et le facteur de correction final sont donnés entre deux valeurs d'énergie.

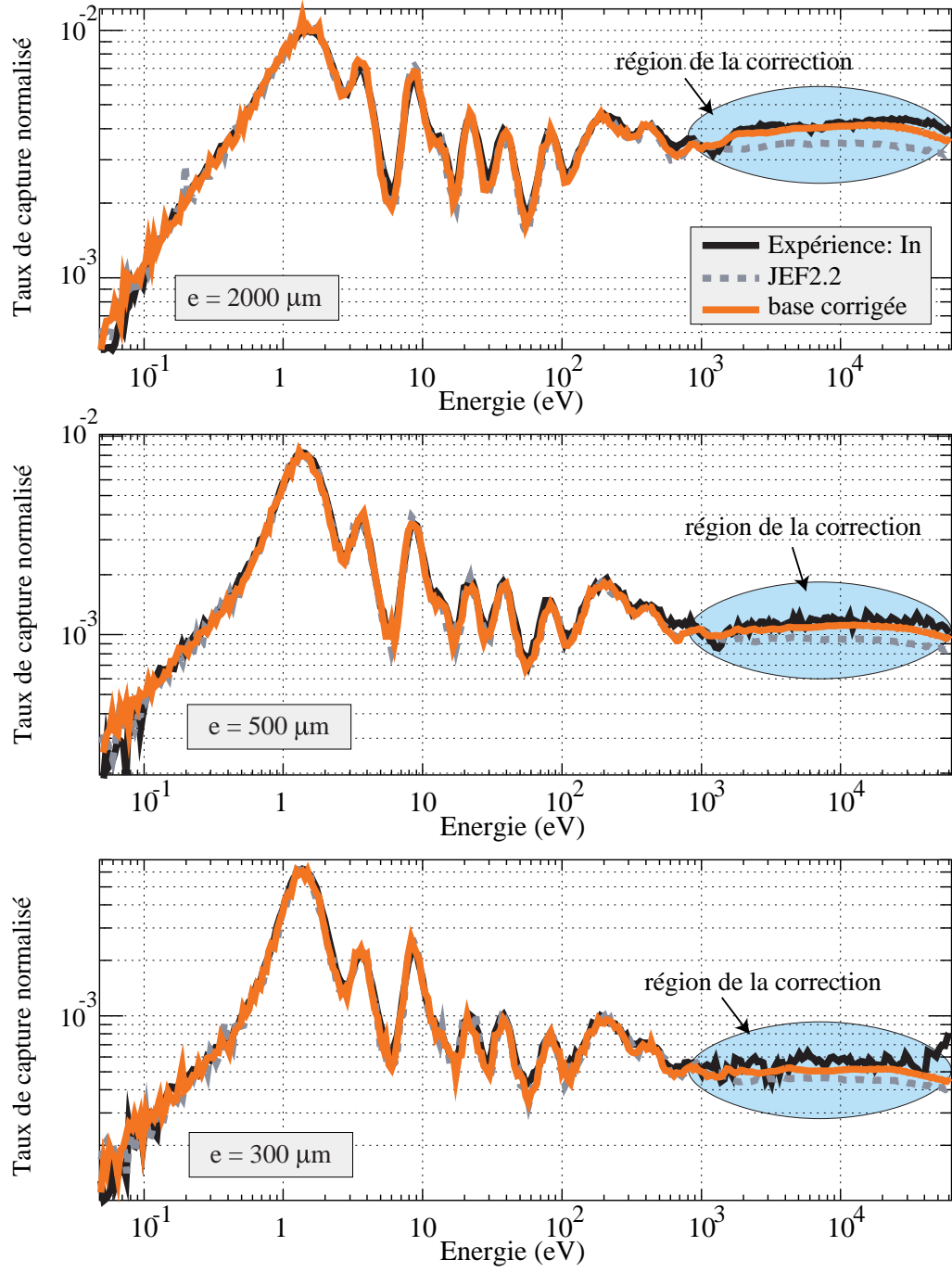


FIG. 6.11 – Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d'indium mesurés et simulés avec la base de données JEF2.2 (ligne en tiret grise) et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés (ligne grise).

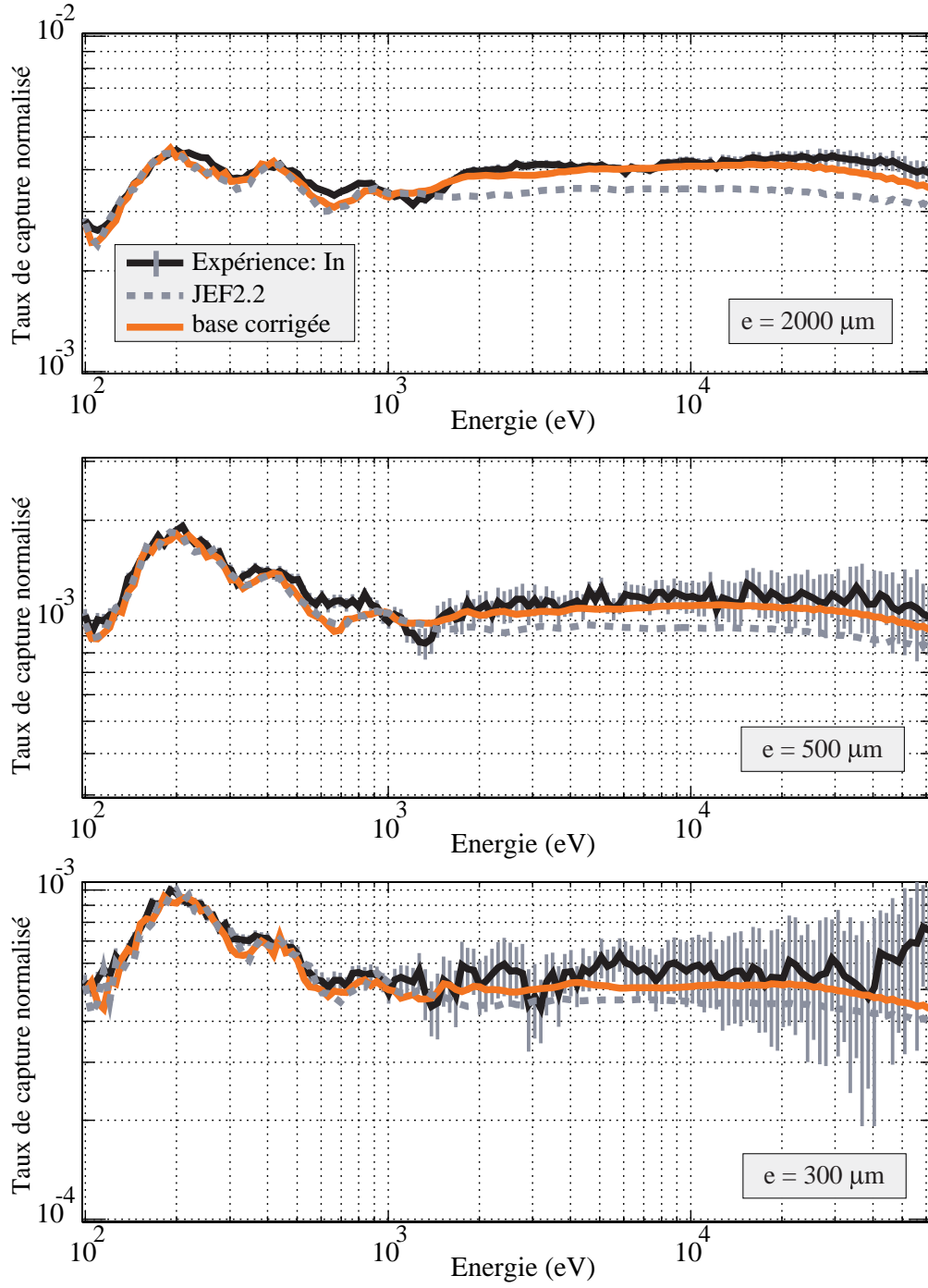


FIG. 6.12 – *Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d'indium mesurés et simulés avec la base de données JEF2.2 et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés; observation entre 100 eV et 60 keV.*

6.4 Résultats pour des matériaux présents dans les cœurs de réacteurs

6.4.1 Les échantillons de thorium

Les résultats de taux de capture sur les échantillons de thorium de $175\ \mu\text{m}$, $1000\ \mu\text{m}$ et $4000\ \mu\text{m}$ d'épaisseur sont regroupés sur la figure 6.13. Ces épaisseurs sont typiques de celles employées dans les réacteurs. Les simulations ont pu être effectuées en utilisant les bases de données : ENDF/B-VI (ligne continue grise), JEF2.2 (ligne discontinue noire) et JENDL3.2 (ligne discontinue grise).

Nous pouvons observer que le taux de capture est particulièrement bien décrit par les simulations utilisant les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2 entre 10 eV et 30 keV. Les taux de capture expérimentaux pour les trois épaisseurs présentent de fortes fluctuations en-dessous de 10 eV. En effet, la section efficace de capture du thorium est inférieure à 1 barn entre 1 eV et 10 eV (cf. fig. A.6(b)). Le taux de comptage sur le thorium est faible, le rapport signal sur bruit est donc très faible. La capture sur des nucléides dont la section efficace est inférieure à 1 barn est difficilement accessible en raison du bruit de fond γ élevé. A ce faible taux de capture se rajoute la radioactivité importante du thorium. La région d'énergie inférieure à 10 eV ne peut pas être traitée bien que les taux de capture simulés présentent des différences. Néanmoins, nous pouvons observer que les simulations utilisant la base JENDL3.2 présentent une sous-estimation de 10% par rapport aux mesures avec les trois épaisseurs d'échantillon entre 500 eV et 4 keV.

Le tableau 6.8 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JEF2.2	JENDL3.2
$10\ \text{eV} < E < 500\ \text{eV}$	accord	accord	accord
$500\ \text{eV} < E < 4\ \text{keV}$	accord	accord	sous-estimation de l'ordre de 10%
$4\ \text{keV} < E < 30\ \text{keV}$	accord	accord	accord

TAB. 6.8 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du thorium et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

Dans le cas du thorium, nous n'avons pas trouvé de désaccord entre les simulations utilisant ENDF/B-VI et JEF2.2 et l'expérience dans la région d'énergie comprise entre 10 eV et 30 keV. Nous préférons l'utilisation de ces bases de données pour le thorium plutôt que JENDL3.2.

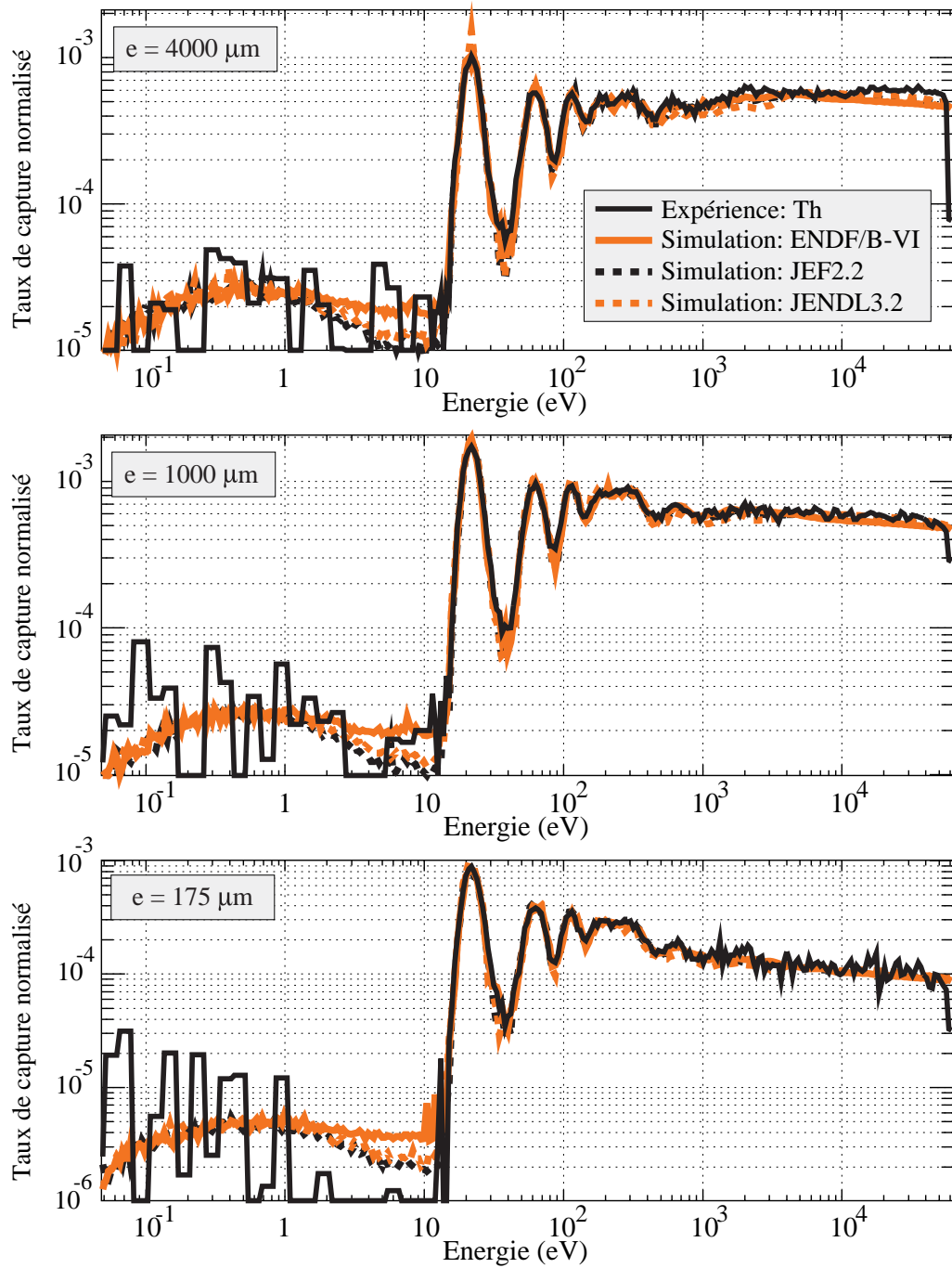


FIG. 6.13 – Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons de thorium d'épaisseurs 175 μm , 1000 μm et 4000 μm mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI (ligne continue grise), JEF2.2 (ligne discontinue noire) et JENDL3.2 (ligne discontinue grise).

6.4.2 La capture sur l'uranium naturel

Un échantillon d'uranium naturel de $178\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur a fait l'objet de mesures. Les simulations avec les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2 de l'uranium ont aussi été effectuées. La figure 6.14 regroupe l'ensemble des résultats expérimentaux et simulés obtenus.

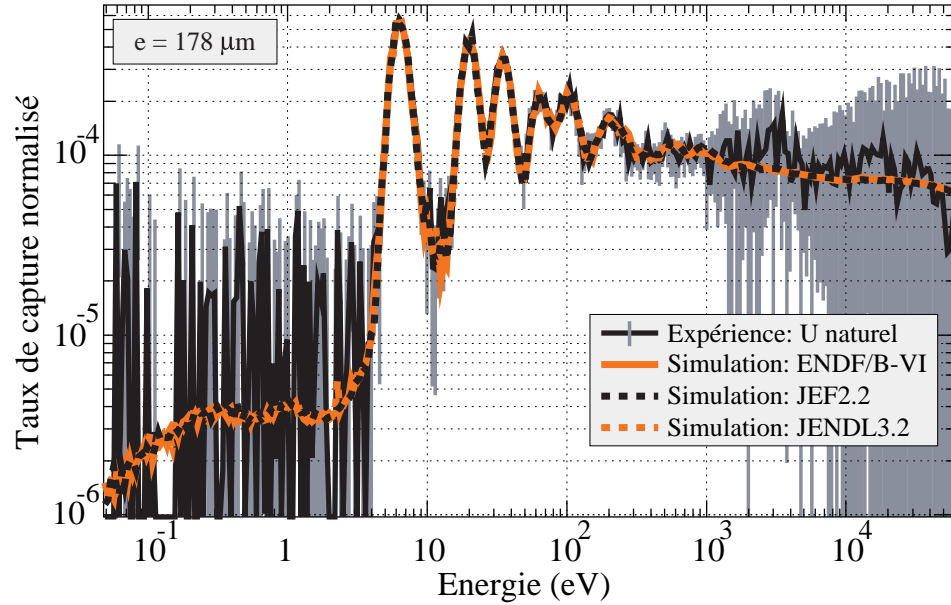


FIG. 6.14 – *Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur l'échantillon d'uranium naturel d'épaisseur $178\text{ }\mu\text{m}$ mesuré et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2.*

Nous pouvons tout d'abord observer sur la figure 6.14 que la statistique du taux de capture expérimental est faible, de fortes fluctuations sont observables en-dessous de 4 eV et ainsi qu'au-dessus de 2 keV. En conséquence, nous ne pouvons donner de validation sur la section efficace de capture de l'uranium extraite de l'une des trois bases de données dans ces deux régions d'énergie. Néanmoins, nous pouvons remarquer que les taux de capture simulés sont identiques entre les trois bases de données entre 0,1 eV et 30 keV. Enfin, le taux de capture expérimental est très bien décrit par les trois simulations entre 4 eV et 2 keV.

6.4.3 La capture sur le technétium

Le technétium dont nous disposons est dilué dans une matrice d'aluminium de $6400\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur (cf. tab. 5.2). La mesure de bruit de fond associée est donc spécifique afin de s'affranchir d'éventuelles captures sur l'aluminium. Nous avons donc effectué cette mesure avec un échantillon d'aluminium de même nature et d'épaisseur identique à celui contenant le technétium. Dans le cas de cet échantillon, nous n'avons donc pas à effectuer les corrections sur le spectre du bruit de fond de l'atténuation des γ et du flux de neutrons dans l'environnement dus à la présence de la cible. Ces

corrections sont supprimées car les effets induits par les noyaux de technétium dilués dans l'aluminium sur le bruit de fond sont négligeables. Dans ce cas, l'atténuation des γ du bruit de fond et la modification du flux de neutrons par la présence de la cible peuvent être considérées identiques dans la matrice d'aluminium avec et sans technétium. La figure 6.15 regroupe les taux de capture expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2.

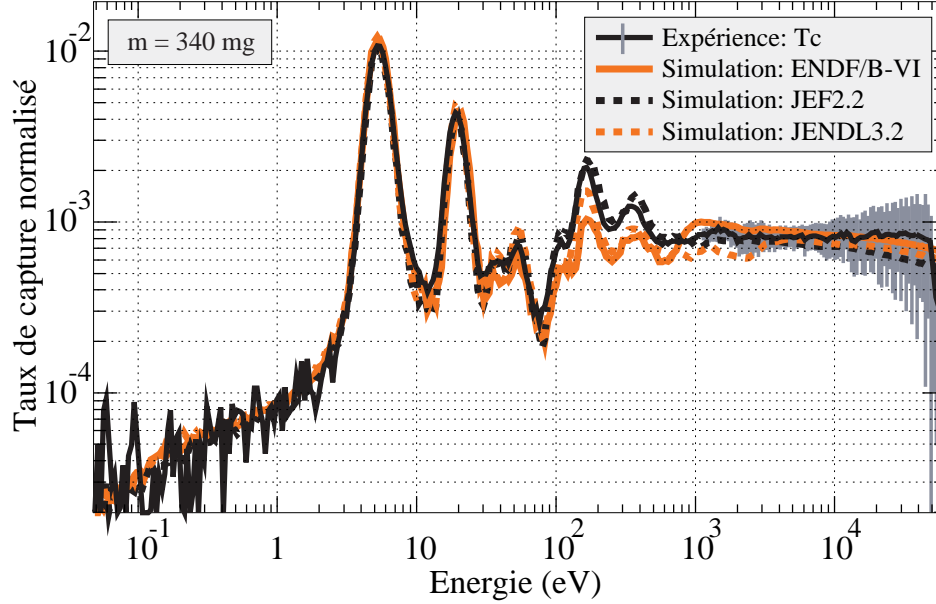


FIG. 6.15 – Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le technétium.

Nous pouvons observer le très bon accord des simulations utilisant les bases JEF2.2 et JENDL3.2 entre 0,1 eV et 100 eV. Nous pouvons remarquer aussi que la simulation avec ENDF/B-VI sous-estime le taux de capture d'environ 15% entre 30 eV et 60 eV. Entre 100 eV et 1 keV, les bases de données ne sont pas en accord avec l'expérience, la simulation utilisant JEF2.2 donne la description du taux de capture expérimental la plus satisfaisante malgré une surestimation de l'ordre de 10%. Le taux de capture est sous-estimé de 20% avec la base de données JENDL3.2 et de 40% avec ENDF/B-VI. Entre 1 keV et 4 keV, la base qui décrit le mieux le taux de capture expérimental est JEF2.2. Nous pouvons faire remarquer que la section efficace de capture extraite de la base JEF2.2 propose une description de la section efficace par des résonances jusqu'à 1 keV (cf. fig. A.7(a)). Au-dessus de 4 keV, les erreurs du taux de capture expérimental sont trop importantes pour pouvoir comparer les résultats. Néanmoins, entre 0,1 eV et 30 keV, nous montrons que la simulation utilisant la base de données JEF2.2 est celle qui décrit le mieux le taux de capture expérimental.

Le tableau 6.9 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Nous allons maintenant rapprocher nos résultats sur le technétium de ceux issus de l'expérience

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JEF2.2	JENDL3.2
$0,1 \text{ eV} < E < 100 \text{ eV}$	accord partiel	accord	accord
$30 \text{ eV} < E < 60 \text{ eV}$	sous-estimation de l'ordre de 15%	accord	accord
$100 \text{ eV} < E < 1 \text{ keV}$	sous-estimation de l'ordre de 40%	surestimation de l'ordre de 10%	sous-estimation de l'ordre de 20%
$500 \text{ eV} < E < 4 \text{ keV}$	surestimation de l'ordre de 10%	accord	sous-estimation de l'ordre de 15%
$4 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	accord	désaccord	désaccord

TAB. 6.9 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du technétium et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

TARC [2, 29]² et des mesures réalisées sur l'installation GELINA³ par F.Gunsing et al. [56, 57]. Lors de l'expérience TARC, la section efficace corrigée a été déterminée avec le code SAMMY [58, 59] et comparée à une simulation dans le massif de plomb du CERN utilisant la base de données JENDL3.2 (cf. fig. 6.16). Les résultats montrent une bonne description de la section efficace simulée en-dessous de 100 eV et une sous-estimation de l'ordre de 10 à 20% entre 100 eV et 1 keV par rapport à la mesure. La comparaison des résultats expérimentaux de l'expérience TARC avec ceux de Geel évalués avec le code SAMMY montrent que les résultats de l'expérience à GELINA sont supérieurs d'environ 10% à ceux de TARC entre 150 eV et 1 keV. Bien que nous ne puissions pas directement comparer ces résultats avec les nôtres, nous pouvons néanmoins remarquer que les écarts observés entre les expériences TARC et à GELINA par rapport à JENDL3.2 sont en accord avec les écarts de notre expérience et les résultats simulés avec JENDL3.2. Nos objectifs n'étant certes pas de mesurer la section efficace de capture du technétium, nous montrons néanmoins que nos résultats sont non seulement compatibles avec ceux de l'expérience à TARC mais aussi avec ceux de l'expérience réalisée à GELINA.

2. La méthode de mesure est très similaire à la nôtre : un détecteur CeF_3 est placé dans un canal du massif de plomb du CERN

3. Geel Electron LINear Accelerator de l'IRMM (Institute for Reference Materials and Measurements)

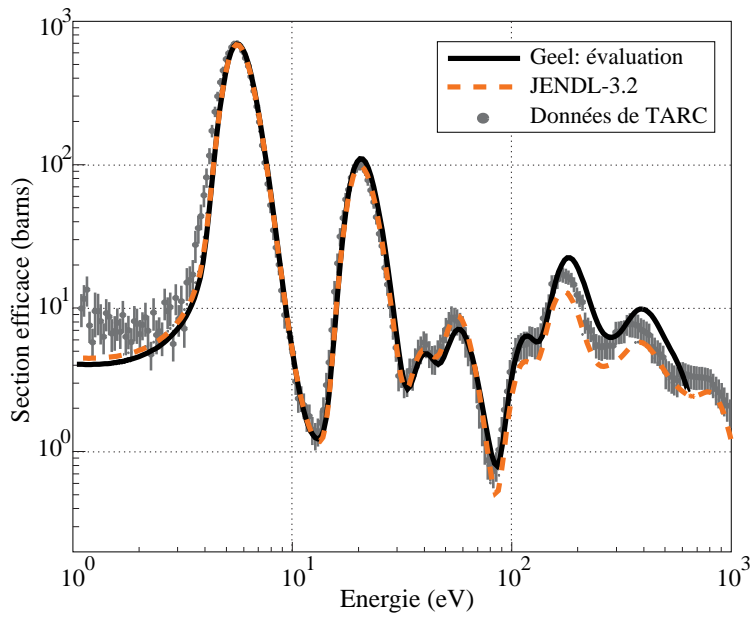


FIG. 6.16 – Comparaison des résultats de l'expérience, GELINA et de la simulation avec la base de données JENDL3.2 pour le technétium obtenus par une évaluation utilisant le code SAMMY [2, 59].

6.5 Résultats pour des noyaux présents dans les structures des réacteurs

Outre l'importance fondamentale que représente la bonne connaissance des sections efficaces des combustibles, des produits de fission et du caloporteur, les matériaux de structures peuvent être, du point de vue de la capture neutronique, la cause d'erreurs sur la neutronique des cœurs des réacteurs nucléaires ou dans l'évaluation de ces matériaux de structure. Il nous est donc apparu utile de tester quelques nucléides présents dans les aciers employés pour les structures [60]. Nous n'avons pas pu disposer d'échantillons d'épaisseurs suffisantes pour tester les sections efficaces de capture du fer des bases de données. Néanmoins, nous avons pu effectuer des mesures sur le tungstène, le molybdène, le nickel et le manganèse [61].

6.5.1 L'échantillon de tungstène

Une mesure sur un échantillon de tungstène d'épaisseur 1000 μm a été effectuée. Nous avons pu simuler le taux de capture sur cet échantillon avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2. Nous avons remarqué que les évaluations du tungstène naturel ainsi que celles de son isotope 180 (sa proportion est de 0,12%) ne sont pas disponibles dans la base de données JEF2.2⁴. Cet isotope comporte une résonance à 15,9 eV de section efficace 22000 barns [48], il ne peut donc pas être négligé. C'est pourquoi, le taux de capture simulé par la reconstruction de l'isotope naturel extrait de la base

4. Les fichiers évalués et disponibles au format ENDF sont accessibles notamment sur le site internet de la LANL : <http://t2.lanl.gov/data/data.html>

JEF2.2 n'est pas présenté. La figure 6.17 regroupe donc les taux de capture expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2.

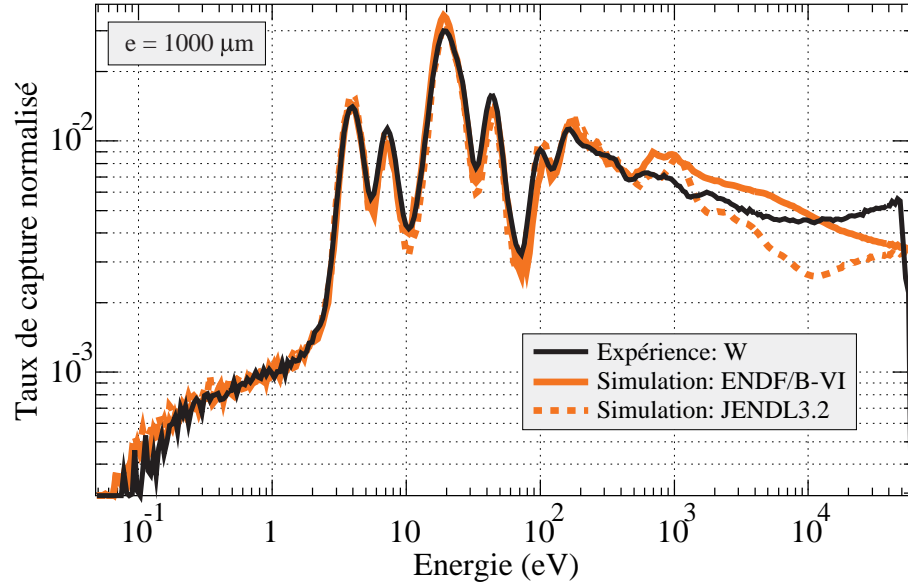


FIG. 6.17 – Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le tungstène.

Nous pouvons tout d'abord observer que le taux de capture expérimental est relativement bien décrit en-dessous de 40 eV. Les résonances à 4,2 eV et 7,6 eV sont bien décrites par JENDL3.2. Nous pouvons faire remarquer que la simulation utilisant la base de données ENDF/B-VI décrit mieux le minimum du taux de capture à 10 eV que la base JENDL3.2. Le taux de réaction dans la résonance double à 20 eV est surestimé d'environ 15% par la simulation avec la base ENDF/B-VI. Entre 40 eV et 100 eV, les positions des résonances simulées sont satisfaisantes mais les taux de capture sont sous-estimés d'environ 10 à 15%. Entre 100 eV et 500 eV, les taux de réaction simulés sont en bon accord avec l'expérience. Au-dessus de 500 eV, nous observons clairement qu'aucune des deux bases de données ne décrit correctement le taux de capture expérimental. Les désaccords varient de 15% à 30% dans cette zone d'énergie.

Le tableau 6.10 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Dans le cas du tungstène, nous pouvons noter que le taux de capture expérimental est bien décrit dans des zones différentes en énergie quel que soit la base de données. Le désaccord au-dessus de 500 eV est estimé trop important pour les deux bases de données pour pouvoir prétendre proposer une éventuelle correction de la section efficace de capture de l'une d'entre elles. N'ayant eu à notre disposition qu'un seul échantillon de tungstène, nous ne pouvons donc pas savoir si ce désaccord est dû à une mauvaise description des résonances.

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JENDL3.2
$0,1 \text{ eV} < E < 400 \text{ eV}$	accord partiel	accord partiel
$E \simeq 4,2 \text{ eV}$ et $E \simeq 7,6 \text{ eV}$	désaccord de l'ordre de 15%	accord
$E \simeq 10 \text{ eV}$	accord	désaccord de l'ordre de 10%
$E \simeq 20 \text{ eV}$	surestimation de l'ordre de 15%	accord
$40 \text{ eV} < E < 100 \text{ eV}$	accord	accord
$100 \text{ eV} < E < 500 \text{ eV}$	surestimation de l'ordre de 10%	sous-estimation de l'ordre de 15%
$500 \text{ eV} < E < 30 \text{ keV}$	désaccord de 15% à 10%	désaccord de 15% à 10%

TAB. 6.10 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 du tungstène et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

6.5.2 L'échantillon de molybdène

L'échantillon de molybdène a une épaisseur de $1000 \mu\text{m}$. La figure 6.18 présente les taux de capture expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2.

Nous pouvons observer que le taux de capture expérimental est relativement bien décrit par les trois bases de données entre $0,1 \text{ eV}$ et 30 keV . Nous pouvons remarquer que les spectres simulés avec les bases de données JENDL3.2 et JEF2.2 sont identiques. Un désaccord de l'ordre de 15% est visible sur la résonance à $11,5 \text{ eV}$ entre l'expérience et les bases JENDL3.2 et JEF2.2 ; la simulation utilisant ENDF/B-VI présente un désaccord de l'ordre de 40% dans cette résonance. Nous pouvons aussi observer un désaccord de l'ordre de 20% entre la simulation avec la base ENDF/B-VI et l'expérience dans la résonance à 125 eV . Les simulations des trois bases de données présentent un maximum à 400 eV qui est décalé par rapport à l'expérience dont le maximum est à 350 eV . Au-dessus de 1 keV , les simulations utilisant les bases de données JENDL3.2 et JEF2.2 sont en excellent accord avec l'expérience. Dans cette région d'énergie, la simulation avec ENDF/B-VI sous-estime de 15% le taux de capture expérimental.

Le tableau 6.11 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Pour effectuer des simulations dans lesquelles le molybdène est présent, nous conseillerons donc l'utilisation des bases de données JENDL3.2 ou JEF2.2. Nous pouvons faire remarquer que la section efficace de capture extraite de la base JENDL3.2 est celle qui propose une description de la section efficace par des résonances jusqu'à 40 keV (cf. fig. A.8(a)). Nous rappelons l'importance d'une description de la section efficace par des résonances dans la région des résonances non résolues en cible

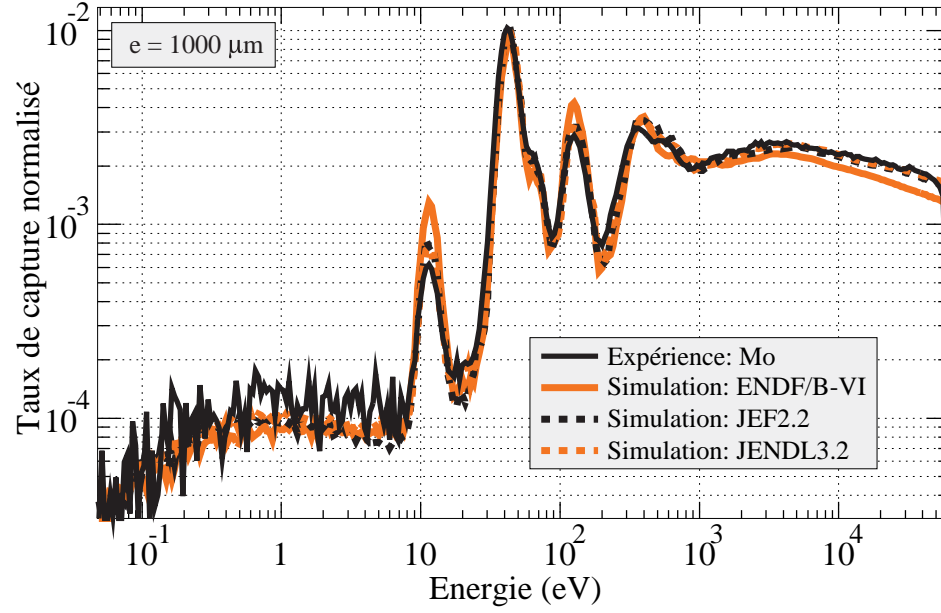


FIG. 6.18 – Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données *ENDF/B-VI*, *JEF2.2* et *JENDL3.2* en fonction de l'énergie des neutrons sur le molybdène.

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JEF2.2	JENDL3.2
$E \simeq 11,5 \text{ eV}$	surestimation de l'ordre de 40%	désaccord de l'ordre de 15%	désaccord de l'ordre de 15%
$E \simeq 125 \text{ eV}$	surestimation de l'ordre de 20%	accord	accord
$E \simeq 300 \text{ eV}$	décalage en énergie	décalage en énergie	décalage en énergie
$1 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	sous-estimation de l'ordre de 15%	accord	accord
$4 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	accord	désaccord	désaccord

TAB. 6.11 – Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du molybdène et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.

épaisse comme nous l'avons étudié en détail pour les échantillons de tantale.

6.5.3 L'échantillon de nickel

Comme nous pouvons l'observer sur la figure A.8(b), la section efficace de capture du nickel est faible: en moyenne inférieure à 1 barn dans notre zone d'observation. Nous avons donc effectué une mesure sur un échantillon de $3000\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Les trois bases de données sont disponibles pour la simulation. La figure 6.19 regroupe l'ensemble des taux de capture expérimental et simulés sur cet échantillon. Nous faisons remarquer que l'évaluation du nickel dans la base ENDF/B-VI est identique à celle dans la base JEF2.2 [18], les résultats sont à ce titre identiques. Néanmoins, il existe une évaluation du nickel naturel dans la base ENDF/B-V (base disponible par défaut pour le code MCNP4B), les résultats utilisant cette base de données sont donc présentés.

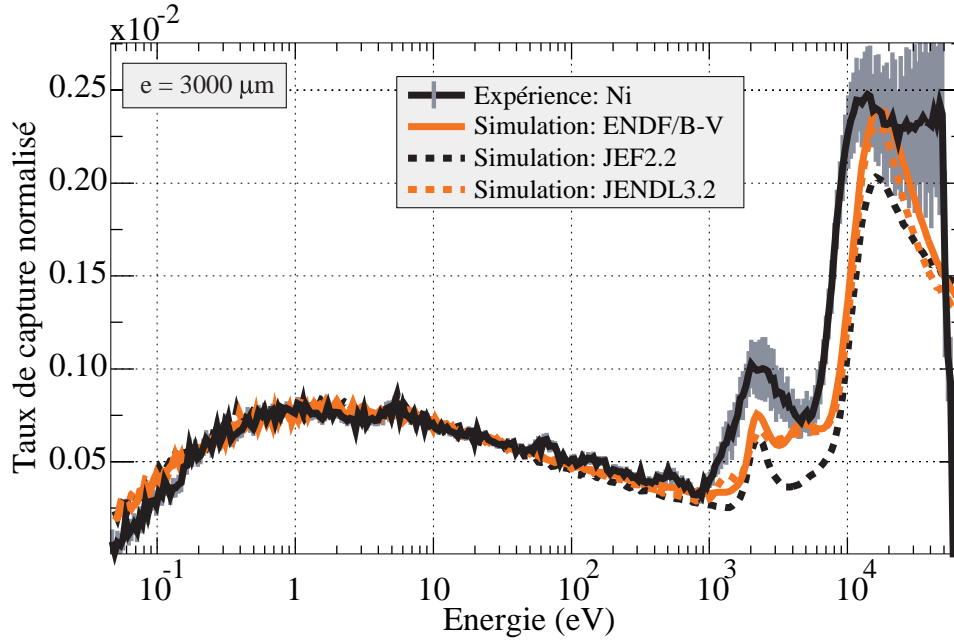


FIG. 6.19 – *Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-V, JEF2.2 et JENDL3.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le nickel.*

Nous pouvons tout d'abord faire remarquer que les résultats simulés sont très différents d'une base à l'autre au-dessus de 1 keV. Ceux-ci illustrent parfaitement les différences importantes observées entre les sections efficaces de capture extraites des trois bases de données (cf. fig. A.8(b)). Nous pouvons ensuite observer que le taux de capture expérimental est parfaitement décrit par les simulations avec les trois bases de données entre 0,1 eV et 1 keV. Au-dessus de 1 keV, aucun des trois taux de capture simulés ne sont en accord avec l'expérience. Le taux de capture expérimental est 30% supérieur à la simulation utilisant la base de données ENDF/B-V à environ 2 keV. Nous pouvons observer aussi que les simulations ont un maximum de taux de capture à 16 keV; ce maximum est situé à 13 keV dans l'expérience.

Le tableau 6.12 résume, pour les bases de données ENDF/B-V, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-V	JEF2.2	JENDL3.2
$0,1 \text{ eV} < E < 1 \text{ keV}$	accord	accord	accord
$1 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	sous-estimation supérieure à 20%	sous-estimation supérieure à 20%	sous-estimation supérieure à 20%

TAB. 6.12 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du nickel et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

Dans le cas du nickel, nous observons d'importants désaccords entre l'expérience et les simulations. Mais il faut rappeler que la section efficace de capture du nickel est faible. Dans le cadre de simulations précises de scénarios de réacteurs, les erreurs d'évaluation de la section efficace du nickel n'auront vraisemblablement qu'une incidence faible sur la neutronique du cœur sauf dans le cas où le nickel est utilisé comme réflecteur. Néanmoins, dans le cadre de la validation des sections efficaces extraites des bases de données appliquée au cas du nickel et réclamant une précision supérieure à 5%, il apparaît de fortes imprécisions dans son évaluation.

6.5.4 L'échantillon de manganèse

Le manganèse est aussi utilisé dans les aciers des matériaux de structure des réacteurs nucléaires. Nous avons pu effectuer une mesure du taux de capture sur un fragment de ce matériau d'épaisseur $2400 \mu\text{m}$. Les évaluations du manganèse sont identiques pour les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 comme nous pouvons l'observer sur la figure A.9. La figure 6.20 présente les résultats obtenus pour l'expérience et les simulations avec les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2.

Nous pouvons observer le bon accord en-dessous de 100 eV entre les simulations et l'expérience. Au-dessus de 100 eV, d'importants désaccords sont visibles. Le taux de capture mesurés est très bien décrit par la simulation utilisant la base de données JEF2.2 entre 100 eV et 300 eV, le taux de capture simulé avec ENDF/B-VI est décalé de façon importante. Aucune des deux bases n'est en accord avec l'expérience dans la description du maximum à 350 eV. Entre 600 eV et 10 keV, les taux de capture simulés avec ces deux bases de données ne sont pas en accord avec l'expérience. Nous pouvons observer qu'il existe un maximum de taux de capture à environ 2,5 keV qui n'est pas bien décrit par les simulations. Au-dessus de 10 keV, la base de données JEF2.2 est en accord avec l'expérience.

Le tableau 6.13 résume, pour les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2, les régions d'énergie où les simulations sont en accord ou en désaccord avec l'expérience.

Bien que la section efficace du manganèse soit décrite par une structure en résonances en-dessous de 100 keV dans la base ENDF/B-VI (cf. fig. A.9), nous pouvons remarquer que celle-ci produit globalement des résultats moins satisfaisants que la base de données JEF2.2. Dans le cas du manganèse, nous ne pouvons pas proposer de table de correction en raison des désaccords trop importants observés entre la simulation et l'expérience, notamment sur la position et les paramètres de résonances.

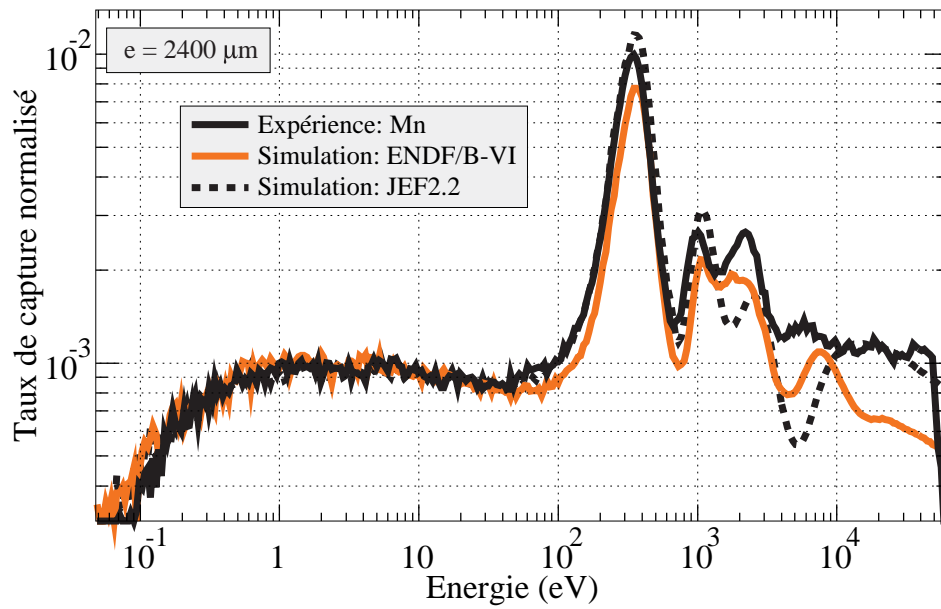


FIG. 6.20 – *Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le manganèse.*

Région d'énergie	Bases: ENDF/B-VI	JEF2.2
$0,1 \text{ eV} < E < 100 \text{ eV}$	accord de l'ordre de 5%	accord de l'ordre de 5%
$E \simeq 350 \text{ eV}$	sous-estimation de l'ordre de 20%	surestimation de l'ordre de 15%
$600 \text{ eV} < E < 10 \text{ keV}$	désaccord et décalage en énergie	désaccord et décalage en énergie
$10 \text{ keV} < E < 30 \text{ keV}$	sous-estimation de l'ordre de 40%	accord

TAB. 6.13 – *Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du nickel et l'expérience dans les différentes régions d'énergie.*

6.6 Résumé et enseignements

Nous avons confronté dans ce chapitre les résultats expérimentaux et simulés avec trois bases de données sur une quantité importante d'échantillons. Nous pouvons faire le résumé suivant :

- Les résultats obtenus avec les échantillons d'or de plusieurs épaisseurs nous ont permis de valider la méthode d'analyse, de comparaison et de validation des bases de données.
- Dans le cas de l'argent, nous avons montré que l'utilisation de ENDF/B-VI était exclue. Un désaccord d'environ 10% a été observé avec les bases de données JEF2.2 et JENDL3.2 entre 700 eV et 4 keV. Ce désaccord est lié à la transition entre la zone des résonances résolues et non résolues.
- Dans le cas du tantale, nous avons exclu l'utilisation des bases ENDF/B-VI et JEF2.2. Une table de correction a été proposée pour la base de données JENDL3.2.
- Dans le cas de l'indium, les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 sont exclues, l'utilisation de JEF2.2 est conseillée.
- Pour le thorium, nous conseillons l'utilisation des bases de données JEF2.2 et ENDF/B-VI avec lesquelles aucun désaccord supérieur à 10% n'a été observé entre 10 eV et 30 keV.
- Dans la cas de l'uranium naturel, aucun désaccord entre l'expérience et les simulations avec les bases de données ENDF/B-VI, JENDL3.2 et JEF2.2 n'a été observé.
- Les résultats sur le technétium montrent une meilleure description du taux de capture expérimental par la simulation utilisant la base de données JEF2.2. De plus, nous avons montré que nos résultats expérimentaux sont en accord avec ceux de l'expérience TARC et de GELINA.
- L'étude de quelques noyaux présents dans les alliages employés dans les matériaux de structure des réacteurs nucléaires a montré qu'il y avait non seulement de nombreuses différences entre les sections efficaces de capture des bases de données mais que les taux de capture simulés résultants étaient bien souvent en désaccord avec l'expérience.

Nous pouvons dégager différents enseignements relatifs à l'intérêt de la méthode de mesure par spectromètre à temps de ralentissement :

- La méthode expérimentale et de simulation très précise avec le code MCNP semble tout à fait adaptée pour effectuer des validations de base de données entre 0,1 eV et 30 keV.
- La simulation décrit parfaitement bien les taux de capture expérimentaux entre 0,1 eV et 30 keV tant que la section efficace de capture est bien connue dans cette gamme d'énergie.
- L'étude sur plusieurs épaisseurs d'échantillon valide le traitement des phénomènes d'auto-absorption par le code de calcul MCNP.
- La comparaison des taux de captures expérimentaux et simulés sur différentes épaisseurs d'échantillon permet d'affiner la validation d'une base de données (cas du tantale).
- Nous pouvons détecter très rapidement les erreurs ou insuffisances des bases de données pour certains nucléides.

- Nous pouvons faire le choix immédiatement de la meilleure base de données, notamment grâce aux mesures à différentes épaisseurs où la sensibilité à l'auto-absorption est observable dans la région d'énergie des résonances non résolues.
- L'utilisation d'une base de données est fixée à 5% près.
- Une table de correction de la section efficace de capture est proposée. Celle-ci réduit les écarts entre les taux de réaction expérimentaux et simulés dans une fourchette à plus ou moins 5%.

Conclusion

Nous avons décrit dans ce travail notre capacité à effectuer des tests de sections efficaces à l'aide d'un spectromètre à temps de ralentissement. Ce travail, effectué à l'ISN, s'inscrit dans le cadre des études de validation de bases de données de sections efficaces de matériaux employés dans les réacteurs et dans les projets de réacteurs du futur. Tout au long de ces trois années, notre méthodologie s'est précisée et affinée.

Le dispositif expérimental utilisé pour ces expériences est, comme nous l'avons vu, relativement simple. Celui-ci est constitué d'un générateur de neutrons de 14 MeV pulsé intense (GENEPI) très stable et souple d'utilisation; ce générateur est à l'heure actuelle couplé au réacteur MASURCA à Cadarache. Les neutrons sont produits au centre d'un massif de plomb de 46,5 tonnes pourvu de canaux de mesure. Les détecteurs employés sont parfaitement classiques; d'une part ceux qui nous ont permis d'effectuer le monitoring (détecteur (α -p), détecteur à gaz ^3He) et d'autre part ceux utilisés pour la détermination du flux de neutrons (détecteur à fissions de l' ^{235}U , irradiation de feuilles de nickel). Un soin important a été pris lors des mesures, notamment concernant leur reproductibilité. Ces mesures nous ont permis dans un premier temps d'étudier le flux de neutrons dans le massif de plomb avec une excellente précision entre 0,1 eV et 100 keV. Dans un deuxième temps, l'analyse des spectres (n,γ) mesurés a été définie et appliquée à toutes les mesures. Cela nous a permis de comparer systématiquement les taux de capture simulés avec l'expérience pour plusieurs échantillons de différentes épaisseurs. Nous rappelons qu'avec ce dispositif expérimental, une mesure complète (signal et bruit de fond) demande seulement une douzaine d'heures de faisceau.

La comparaison des flux de neutrons simulés pour deux bases de données du plomb avec l'expérience a montré notre capacité, avec ce dispositif expérimental, à tester la section efficace de diffusion du plomb avec une précision de l'ordre de 1,5%. Ainsi, la base de données JENDL3.2 du plomb s'est avérée celle décrivant le mieux le flux de neutrons dans le massif entre 0,1 eV et 100 keV. Les comparaisons entre les taux de capture simulés et expérimentaux effectuées sur les échantillons d'or de plusieurs épaisseurs ont permis dans un premier temps de valider l'ensemble de la méthode employée aussi bien pour la prise de données que pour leur analyse. Nous pouvons effectuer des validations des sections efficaces de capture extraites de bases de données disponibles au format ENDF avec une précision de l'ordre de 5% entre 0,1 eV et 30 keV. Nous avons montré aussi que le code de simulation MCNP prend très bien en compte les effets d'auto-absorption dans les échantillons pourvu que les données soient évaluées avec assez de justesse. A ce titre, les études sur plusieurs épaisseurs pour

un même échantillon constituent aussi un test de la description de la section efficace de capture extraite des bases de données (le cas le plus probant est ici le tantale). Nous avons pu aussi constater que la zone où des désaccords sont observés est presque systématiquement la région des résonances non résolues, soit au-dessus de 500 eV environ. Les désaccords observés dans cette région d'énergie sont très souvent supérieurs à 15%. Nous pouvons faire remarquer que quel que soit le scénario de réacteur choisi, de tels désaccords dans cette zone d'énergie ne peuvent être négligés pour obtenir une prédiction satisfaisante. Nous avons pu aussi étudier quelques matériaux employés dans les structures des réacteurs: molybdène, tungstène, nickel et manganèse. Les résultats simulés pour ces matériaux (sauf le molybdène) présentent d'importants désaccords avec l'expérience mais aussi entre les bases elles-mêmes; des résonances sont parfois décrites à une position décalée en énergie par rapport à celle mesurée.

Pour certains matériaux, pour lesquels plusieurs épaisseurs d'échantillon ont pu faire l'objet de mesures, nous avons fait des propositions de corrections. Ces corrections ont été testées directement et comparées à nos résultats expérimentaux. Ces tables de corrections sont donc immédiatement utilisables par les codes de calcul neutronique.

Les performances de ce dispositif expérimental qui ont été obtenues lors de cette campagne de mesures et employant la même méthodologie auraient pu être un peu accrues par une amélioration de la reproductibilité de l'amplitude du détecteur CeF_3 dans le temps. Cela nous aurait permis sans doute d'approfondir davantage les études faites sur l'efficacité. Il est aussi possible de limiter, compte tenu de nos nouveaux acquis, les manipulations du détecteur CeF_3 lors des changements de cibles. Nous rappelons que la difficulté majeure est toujours la présence de matières différentes dans l'environnement proche du détecteur; limiter les manipulations du détecteur revient malgré tout à rajouter des matériaux éventuellement perturbateurs. Dans le cadre des études du flux de neutrons dans le massif de plomb, une statistique importante de la mesure du taux de fission sur la cible d' ^{233}U est requise. L'étude de la propagation des neutrons de la source par des irradiations de cibles de nickel a clairement montré sa faisabilité.

Une amélioration de la relation énergie-temps peut être éventuellement apportée en disposant autour du détecteur CeF_3 un bloc de bismuth d'une quinzaine de centimètre [62]. Grâce au seuil de diffusion inélastique à 1 MeV du bismuth (pour le plomb, le seuil est 600 keV), les processus de diffusion dominant plus tôt que dans le plomb, les neutrons rejoignent donc plus rapidement la relation énergie-temps dans l'environnement du détecteur. La section efficace élastique du bismuth est 10% plus faible que celle du plomb, la base de temps de vol est donc légèrement plus grande que dans le plomb. Néanmoins, le bismuth a une résonance de capture de 14 barns et de diffusion de 1700 barns à 800 eV qui peuvent être pénalisantes. Cette suggestion réclame auparavant quelques études, comme par exemple de tester expérimentalement avec notre méthode les sections efficaces de capture et de diffusion.

Dans le cadre des études des taux de capture, les mesures sur plusieurs échantillons s'étant avérées très riches en enseignements, il serait souhaitable d'étendre cette systématique à d'autres matériaux. Nous pourrions alors donner des tables de correction pour ces éléments. Nous pourrions étendre nos

mesures au fer, au chrome ainsi qu'à d'autres éléments présents dans les structures des réacteurs.

Du point de vue des simulations, la base de données JEF2.2 ajustée (ERALIB1) utilisée par le CEA pourrait aussi être testée. La disponibilité prochaine des bases de données JEF3 et ENDF/B-VI.6 pourrait permettre de la même façon de les valider grâce à notre dispositif expérimental et notre méthodologie.

La nouvelle version du code de calcul: MCNP4C, effectue une reconstruction des résonances dans la zone des résonances non résolues. La validation de cette procédure du code dans cette région d'énergie est possible mais n'a pu être traitée.

Enfin, les acquis de cette expérience du spectromètre à temps de ralentissement couplé à un générateur ouvre des perspectives très prometteuses sur les validations des sections efficaces de diffusion d'autres milieux ralentisseurs projetés comme modérateur et caloporteur dans les réacteurs du futur. Le projet initié par le groupe de Grenoble de la réalisation d'une plate-forme d'études et de recherche sur l'électronucléaire (PEREN) est destiné à effectuer des mesures sur des matériaux utilisés dans les projets de réacteurs à sels fondus. Après avoir testé les propriétés neutroniques d'un massif de graphite, il sera possible d'étudier celles de sels typiques des RSF comme le LiF-BeF_2 par exemple. Une collaboration avec des chimistes de l'École Nationale Supérieure d'Électrochimie et Électrometallurgie de Grenoble (ENSEEG) est créée à cette occasion pour permettre la manipulation des différents sels à étudier ainsi que pour les études du retraitement en ligne permettant l'extraction des actinides et des produits de fission. Les études prévues avec la plate-forme PEREN sur les propriétés de ralentissement des RSF peuvent naturellement être étendues à toutes sorte de matériaux utilisés dans les réflecteurs ou encore dans des nouveaux combustibles tels que ceux prévus pour les réacteurs à haute température (thermiques ou rapides).

La méthodologie expérimentale mise au point dans ce travail de même que la maîtrise complète des outils de simulation avec notamment la possibilité de faire des études de sensibilité ouvrent donc de larges possibilités pour une validation rapide de bases de données.

Annexe

Annexe A

Sections efficace des nucléides utilisés dans l'expérience

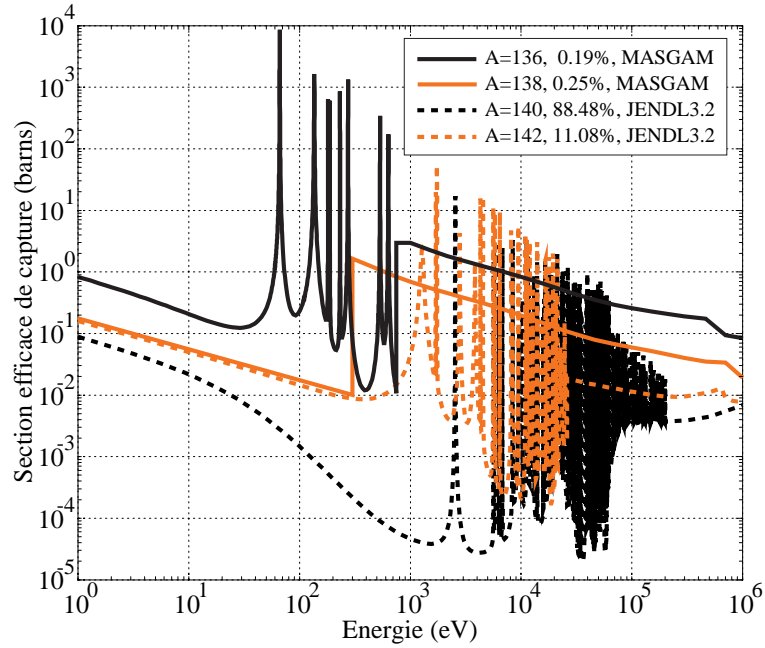
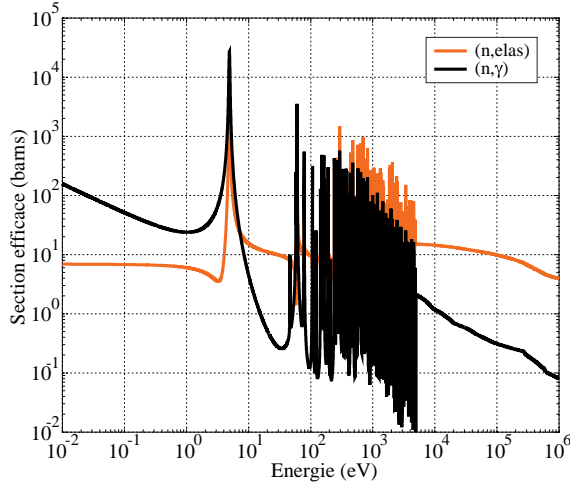
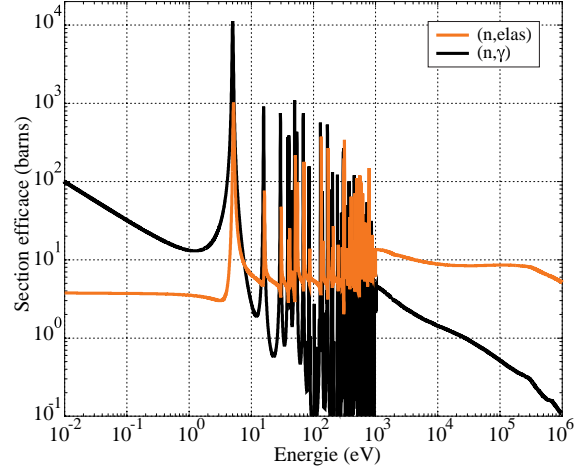


FIG. A.1 – Sections efficaces de capture des isotopes 136, 138 [48], 140 et 142 du cérium extraites de la base de données JENDL3.2.

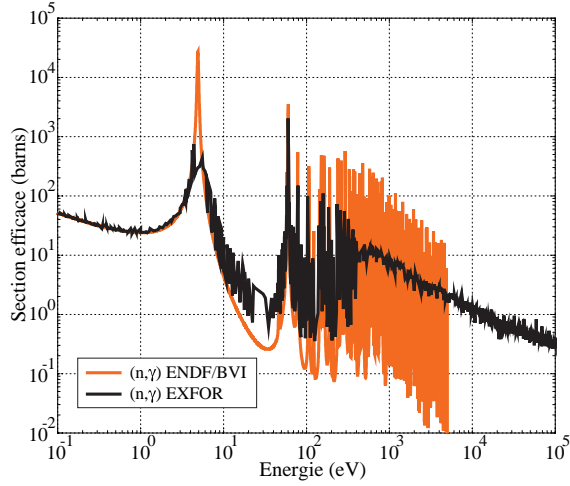


(a) Sections efficaces élastique et de capture de l' ^{197}Au extraites de la base de données ENDF/B-VI.

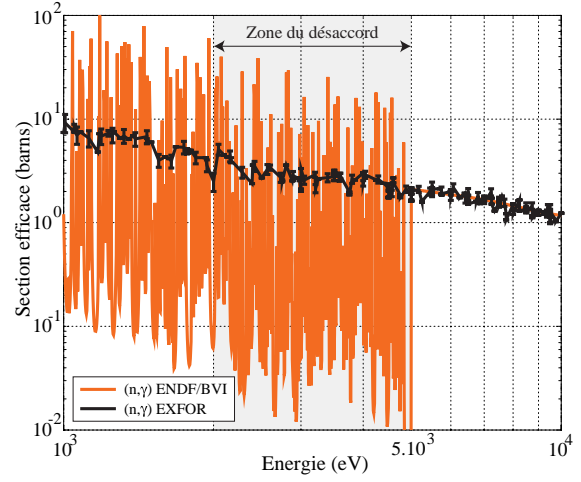


(b) Sections efficaces élastique et de capture de l'argent naturel extraites des données disponibles par défaut pour le code MCNP.

FIG. A.2 – Sections efficaces élastique et de capture de l' ^{197}Au et de l'argent naturel.



(a) Région d'énergie: $0,1 \text{ eV} < E < 100 \text{ keV}$



(b) Région d'énergie: $1 \text{ keV} < E < 10 \text{ keV}$.
Les données expérimentales de EXFOR sont entachées d'une erreur de l'ordre de 10%

FIG. A.3 – Comparaison des sections efficaces de capture de l'or extraites des bases de données ENDF/B-VI et d'EXFOR.

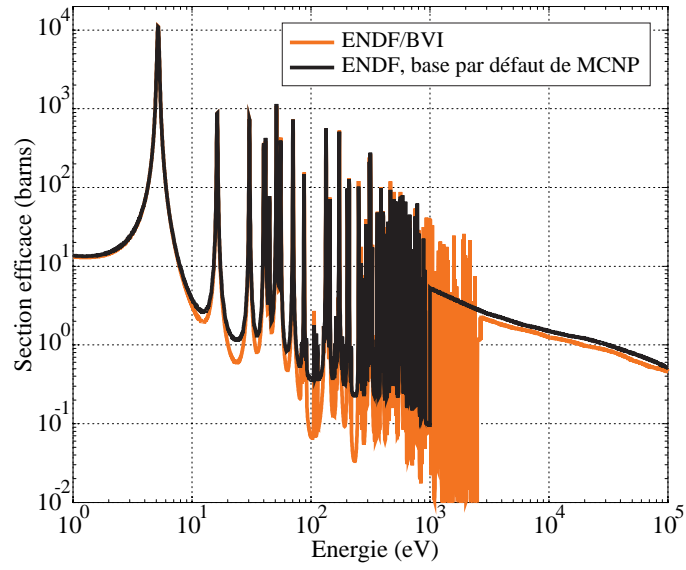
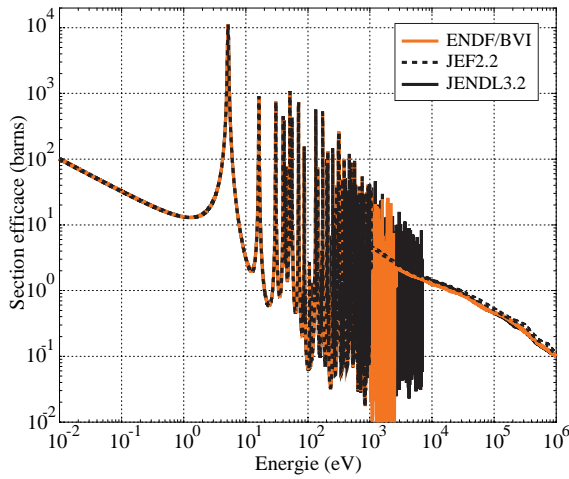
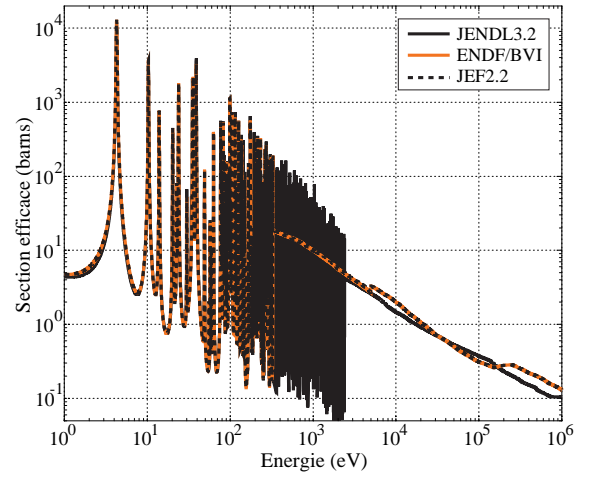


FIG. A.4 – *Superposition des sections efficaces de capture de l'argent extraites de la reconstruction de l'argent naturel avec les isotopes 107 et 109 de la base ENDF/B-VI et de l'évaluation de l'argent naturel de la base par défaut disponible dans le code MCNP.*

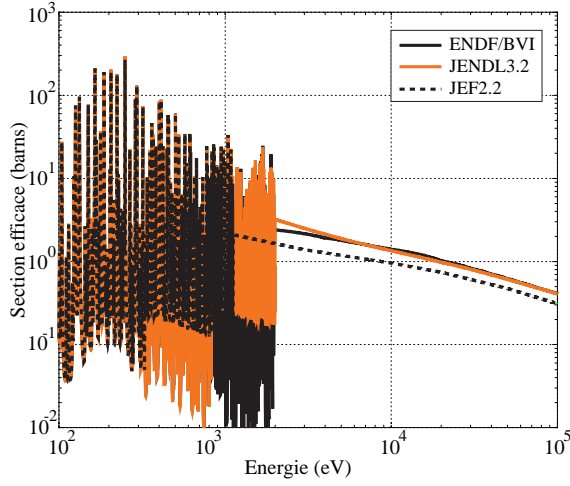


(a) Sections efficaces de capture de l'argent naturel

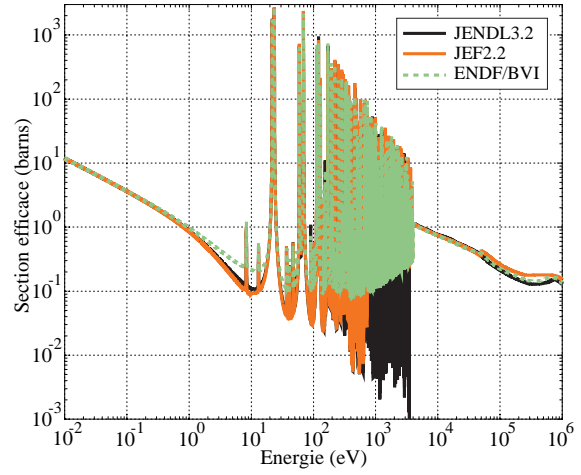


(b) Sections efficaces de capture du ^{181}Ta dans la zone du désaccord

FIG. A.5 – *Sections efficaces de capture de l'argent et du tantale extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2.*

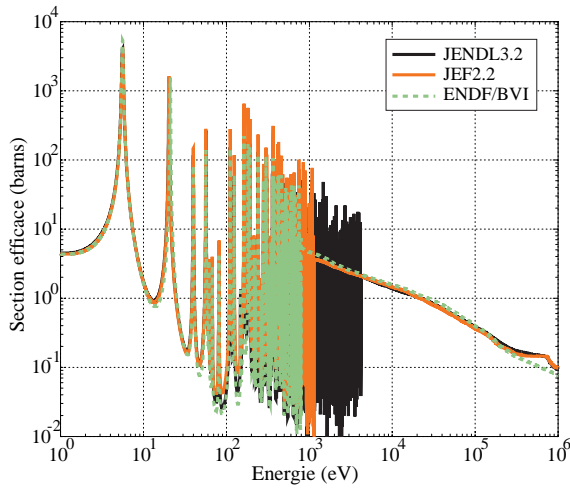


(a) Sections efficaces de capture de l'indium naturel dans la zone du désaccord

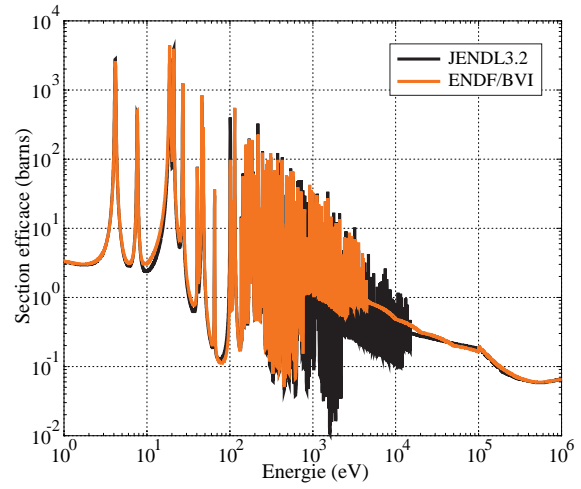


(b) Sections efficaces de capture du ^{232}Th

FIG. A.6 – Sections efficaces de capture de l'indium et du thorium extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2.

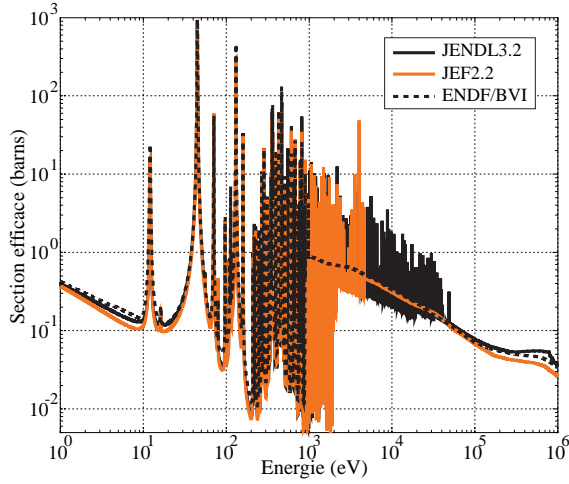


(a) Sections efficaces de capture du ^{99}Tc

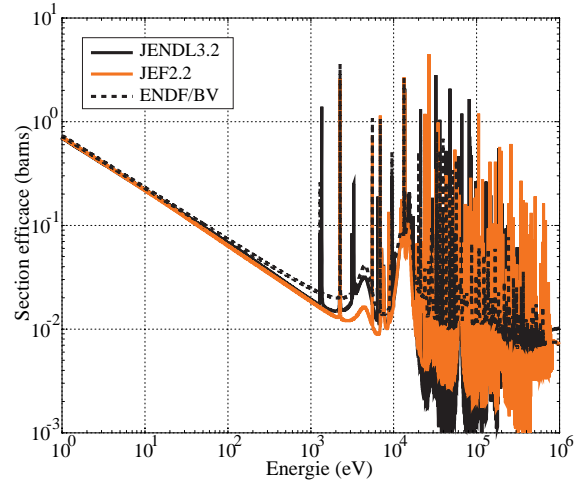


(b) Sections efficaces de capture du tungstène

FIG. A.7 – Sections efficaces de capture du technétium et du tungstène extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2.



(a) Sections efficaces de capture du molybdène naturel



(b) Sections efficaces de capture du nickel naturel

FIG. A.8 – Sections efficaces de capture du molybdène et du nickel extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2. Dans le cas du nickel, les évaluations des isotopes dans les bases de données ENDF/B-VI sont identiques à celles de JEF2.2, la section efficace de capture présentée est celle prise de la base ENDF/B-V

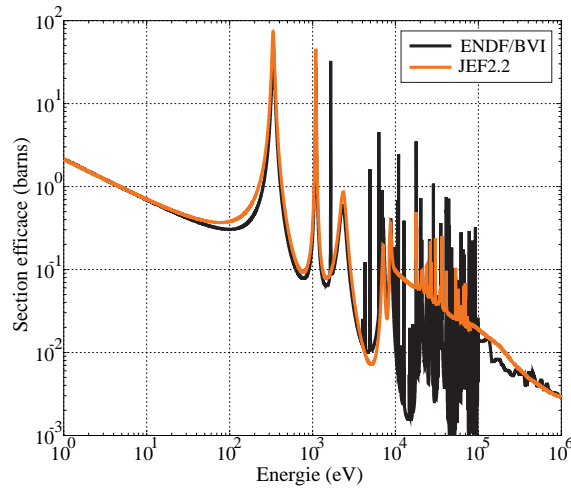


FIG. A.9 – Sections efficaces de capture du manganèse extraites de ENDF/B-VI, JEF2.2.

Bibliographie

- [1] Journal Officiel. Loi n°91-1381 du 30/12/1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs.
- [2] TARC Collaboration. *Project report: Neutron-driven nuclear transmutation by adiabatic resonance crossing*. European Commission, EURATOM, EUR 19117-EN. (1999).
- [3] C.D. BOWMAN et al. *Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A320, 336-367 (1992).
- [4] C. RUBBIA et al. *Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier*. CERN/AT/95-44(ET) (1995).
- [5] N.M. ROSENTHAL et al. *Molten-Salt Reactors History, Status and Potential*. Nucl. Appl. Tech. vol. 8 118-136 (1970).
- [6] D. LECARPENTIER. *Le concept AMSTER, aspects physique et sureté*. Thèse de doctorat, Conservatoire National des Arts et Métiers, juin 2001.
- [7] A. NUTTIN et al. *Thorium Fuel Cycles: A Graphite-Moderated Molten Salt Reactor Versus a Fast Spectrum Solid Fuel System*. International Conference on Future Nuclear Systems (Global), septembre 2001, Paris, FRANCE.
- [8] C. CESARSKY et al. *Electronucléaire. Une présentation par des physiciens*. Publication du cercle d'études sur l'énergie nucléaire, (1999).
- [9] R. ENDERLÉ. *Design and performances of CEA spallation targets*. Simulation applied to innovative systems for transmutation, Atelier GEDEON, October 2001.
- [10] M. SALVATORES. *Transmutations: a decade of revival issues, Relevant experiments and perspectives*. In *6th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, Madrid, Décembre 2000.
- [11] A.J. KONING et al. *Nuclear data for accelerator driven system: Nuclear models, experiments and data libraries*. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A414:49-67, (1998).
- [12] H. WEIGMANN. *The GEEL program for Neutron Data Measurements from Thermal to 20 MeV*, Novembre 1998. GEDEON Workshop on nuclear data related to innovative options for transmutation.
- [13] n-ToF Collaboration. *n-ToF Technical Design Report*. CERN/INTC/2000-04, (2000).

- [14] n-ToF Collaboration. *European collaboration for high-resolution measurements of neutron cross sections between 1 eV and 250 MeV*. CERN/SPSC 99-8 SPSC/P310, (1999).
- [15] M. PETIT et al. *Determination of the Neutron Fission Cross-section for ^{233}Pa from 0.5 to 10 MeV Using the Transfer Reaction $^{232}\text{Th}(^3\text{He},\text{pf})^{234}\text{Pa}$* . In *6th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, Madrid, Décembre 2000.
- [16] D. KARAMANIS et al. *Neutron capture cross section of ^{232}Th in the energy range from 0.06 to 2 MeV*. Nuclear Science and Engineering. Novembre 2001.
- [17] D. LARSON. *Oak Ridge Electron Linear Accelerator (ORELA)*. See the web site: <http://www.cad.ornl.gov/jzw/NUCDATA/ND.measure.html>.
- [18] JEF Collaboration. *The JEF-2.2 Nuclear Data Library*. Jef Report 17. NEA Data Bank. Avril 2000.
- [19] F.H. FRÖHNER. *Évaluation et analyse des données relatives aux résonances nucléaires*. Jef Report 18. NEA Data Bank, OCDE. (2000).
- [20] *The NEA High priority Request List*. Status in May 1998, OECD-NEA Nuclear Science Committee.
- [21] S. DAVID. *Thèse de doctorat. Capacité des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles, Evolution des paramètres physiques, Radiotoxicités induites*. Thèse de doctorat, université Joseph Fourier - Grenoble I. ISN 99-27, mars 1999.
- [22] J.F. BRIESMEISTER. *MCNP - A General Monte Carlo N Particle Transport Code.*, 1997. Los Alamos Laboratory report LA-12625-M.
- [23] R. SOULE et al. *Subcriticality and LLFP's transmutation experiments in the presence of an external neutron source in the MASURCA facility; the MUSE experiments*. Transactions of the American Nuclear Society, vol 83, p 324-325 (2000).
- [24] J.M. DE CONTO. *GENEPI: a high intensity deuteron accelerator for pulsed neutron production*. In *European particle accelerator conference*, Stockholm, Suède, 22-26 juin 1998.
- [25] J.L. BELMONT, J.M. DE CONTO. *L'accélérateur "GENEPI" Conception, technologie, caractéristiques*. Rapport interne ISN00.77. (2000).
- [26] C. PEAUCELLE. *La problématique de l'évolution des moments d'une densité de particules soumises à des forces non linéaires*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, octobre 2001.
- [27] H. LISKIEN and A. PAULSEN. *Neutron production cross sections and energies for the reactions $T(p,n)^3\text{He}$, $D(d,n)^3\text{He}$ and $T(d,n)^4\text{He}$* . Nuclear data tables 11, 569-619. (1973).
- [28] V. LACOSTE. *Transmutation de produits de fission à vie longue dans un grand massif de plomb*. Thèse de doctorat, université Bordeaux I, décembre 1998.

- [29] E. BELLE. *Caractérisation du transport de neutrons de spallation dans un grand volume de plomb, Mesure de flux et de taux de transmutation différentiels*. Thèse de doctorat, université Joseph Fourier - Grenoble I, octobre 1998.
- [30] R. BARJON. *Physique des Réacteurs Nucléaires*. 131-138 (1993).
- [31] L. VALENTIN. *Physique subatomique*. Noyaux et particules. Hermann, 1975.
- [32] M. GAUTHRON. *Introduction au génie nucléaire*. INSTN CEA, 1986.
- [33] A.A. BERGMAN et al. *Lead slowing-down neutron spectrometry*. In *Geneva international conference on the peaceful uses of atomic energy*, page 642, 1955.
- [34] R.E. SLOVACEK et al. $^{238}\text{U}(n,f)$ measurements below 100 keV. *Nuclear Science and Engineering*, 62:455–462, (1977).
- [35] A. BENABED, R. BRISSOT. *Le laboratoire de mesure des faibles activités*. Rapport interne ISN96.12, (1996).
- [36] C. BOURGEOIS et al. *Physique nucléaire instrumentale: des éléments pour un bon choix*. IN2P3, Septembre 1994. Ecole Joliot-Curie de physique nucléaire.
- [37] J.F. ZIEGLER, J.P. BIRSACK and U. LITTMARK. *The stopping and ranges of ions in matter.*, volume 1, *the stopping and range of ions in solids*. Pergamon Press, 1985.
- [38] U. LITTMARK and J.F. ZIEGLER. *The stopping and ranges of ions in matter.*, volume 6, *handbook of range distributions for energetic ions in all elements*. Pergamon Press, 1980.
- [39] W.R. LEO. *Techniques for nuclear and particle physics experiments*. Springer-Verlag, 1987.
- [40] S. SHALEV and J.M. CUTLER. *Nuclear Science Engineering.*, 51:52, 1973.
- [41] A. BILLEBAUD et al. *MUSE 3. Tests de mesures neutroniques sur le réacteur MASURCA*. Rapport interne ISN99.43, (1999).
- [42] E. AUFRAY et al. *Extensive studies of CeF_3 crystals, a good candidate for electromagnetic calorimetry at future accelerators*. CERN/PPE/96–064, (1996).
- [43] Philips-Photonics. *Photomultiplier tubes, catalogue*. 1997.
- [44] G. BOSSON, J. BOUVIER et al. *ADCVME8V*. Rapport interne ISN97-68, (1997).
- [45] R. BRUN and F. RADEMAKERS. *ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework*, See also <http://root.cern.ch/>. *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res.*, A 389:81–86, (1997).
- [46] D.I. GARBER and R.R. KINSEY. *BNL 325, neutron cross section.*, volume II, *curves*. Brookhaven National Laboratory, third edition, janvier 1976.
- [47] V. MCLANE. *NRDSRS Users Manual, Experimental Nuclear Reaction Data File (EXFOR: exchange format, see web site: <http://www.nndc.bnl.gov/nndc/exfor/>)*., 1988. BNL-NCS-41300.
- [48] J. CHANG. *Table of the Nuclides*. Korea Atomic Energy Research Institute, <http://www2.bnl.gov/CoN/>.
- [49] R.B. FIRESTONE, V.S. SHIRLEY. *Table of isotopes Eighth Edition.*, volume II, *Appendix G-2 Absorption of radiation in matter*. Wiley-Interscience, 1996.

- [50] L.V. GROSHEV and G.A. BARTHOLOMEW et al. *Compendium of Thermal-Neutron-Capture γ -Ray Measurements. Part II. Z-47 to Z-67 (Ag to Ho)*. Nuclear data tables Volume 5, Numbers 1-2. November 1968.
- [51] L.V. GROSHEV and G.A. BARTHOLOMEW et al. *Compendium of Thermal-Neutron-Capture γ -Ray Measurements. Part III. Z-68 to Z-94 (Er to Pu)*. Nuclear data tables Volume 5, Numbers 3-4. February 1969.
- [52] H. MORIMNAGA, T. YAMAZAKI. *In-Beam gamma-ray spectroscopy*. North-Holland Publishing Company, 1976.
- [53] *GEANT - Detector Description and Simulation Tool*. CERN Program Library Long Writeup W5013 (1994); CERN Program Library Office, CERN-CN Division, CH-1211 Geneva 23, Switzerland, (1973).
- [54] L. PERROT, A. BILLEBAUD, R. BRISSOT, A. GIORNI, D. HEUER, J.M. LOISEAUX, O. MÉPLAN and J.B. VIANO. *Precise validation of neutron cross section data bases using a lead slowing down spectrometer and simulation from 0,1 eV to 40 keV. Methodology and data on thin and thick targets and data bases adjustments.*, 2001. à soumettre.
- [55] L. PERROT et al. *Recent ^{232}Th Capture Cross Section Validation From 0,1 eV to 40 keV and Self-Shielding Effect Evaluation*. In *6th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, Madrid, Décembre 2000.
- [56] F. GUNSING and al. *Measurement of the neutron total cross section of ^{99}Tc in the energy range from 3 to 600 eV*. International conference on nuclear data for science and technology. Trieste, (1997).
- [57] C. RAEPSAET et al. *The neutron capture and total cross section of ^{99}Tc in the resonance region*. In *5th International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, Belgium, Novembre 1998.
- [58] N.M. LARSON. *SAMMY code - Analysis of Neutron Time-of-Flight Data*, Oak Ridge National Laboratory Report No. ORNL/TM-9179/R3. (1996).
- [59] Z.X. ZHAO. *The ^{99}Tc capture cross section based on Geel data was evaluated using the SAMMY-K1 code* ORNL/TM-9179/R3. (1996).
- [60] D. KERDRAON. *Optimisation par simulation du couplage entre réacteur sous-critique et sa source de spallation. Application à un démonstrateur*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, octobre 2001.
- [61] A. AUBRY, J. BERSANI et al. *Encyclopædia Universalis. Corpus.*, volume 1. Encyclopædia Universalis, Paris, 1995.
- [62] K. KOBAYASHI. *Measurement of Neutron-Induced Fission Cross Sections of ^{229}Th and ^{231}Pa Using Linac-Driven Lead Slowing-Down Spectrometer*. Nuclear Science and Engineering: 139,1-9 (2001).
- [63] R. BRUN and F. RADEMAKERS. *ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework*. In *Proceedings AIHENP'96 Workshop*, Lausanne Switzerland, Septembre 1996.

- [64] J.P. SCHAPIRA. *Transmutation des radionucléides à vie longue : principes, méthodes, réacteurs, accélérateurs*. Cours de DEA Paris XI, Grenoble I, Tours, INSTN.
- [65] H. NIFENECKER et al. *Hybrid nuclear reactors*. Progress in Particle and Nuclear Physics. (1999).
- [66] M. SOUTIF. *Physique neutronique*. Presse universitaire de France. (1962).
- [67] D. KARAMANIS et al. *Neutron Radiative Capture Cross-section of ^{232}Th in the Energy Range from 0.06 to 2 MeV*. In *6th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, Madrid, Décembre 2000.

Table des figures

2.1	Photo du dispositif expérimental : une partie du GENEPI en premier plan et le bloc de plomb au deuxième plan	12
2.2	Schéma d'ensemble du GENEPI	12
2.3	Photo du bloc de plomb	16
2.4	Coupe verticale du bloc de plomb	17
2.5	Sections efficaces de diffusion élastique, inélastique, de capture neutronique et (n,2n) du plomb extraites de la base de donnée JENDL3.2	19
2.6	Schéma de principe du système de détection des particules α et p émises par la source de production de neutrons de GENEPI	23
2.7	Sections efficaces (n,2n), (n,np) et (n,p) du ^{58}Ni	24
2.8	Schéma de principe du détecteur silicium utilisant la cible d' ^{233}U	25
2.9	Schéma du compteur proportionnel à hélium 3	27
2.10	Schéma du photomultiplicateur avec le scintillateur CeF_3 et les éléments l'environnant tel qu'il est décrit dans les simulations	29
2.11	Photo du photomultiplicateur avec le porte-échantillon monté dans l'étui de plomb . .	29
2.12	Schéma de principe de la chaîne électronique et de l'acquisition de l'expérience	31
2.13	Schéma de la géométrie entrée dans MCNP	34
3.1	Réponse des deux jonctions Si en fonction de l'amplitude	38
3.2	Réponse des deux jonctions Si en fonction du temps	38
3.3	Forme temporelle de l'impulsion de neutrons déduite de diverses méthodes expérimentales: courant cible, détecteur (α -p), détecteur à gaz ^3He	40
3.4	Spectre en temps des α +protons mesuré avec la jonction silicium sans la feuille d'aluminium	41
3.5	Spectre en amplitude des α +protons mesuré avec la jonction silicium sans feuille d'aluminium	42
3.6	Variation de la fréquence autour de la valeur moyenne 433 Hz pendant une expérience	43
3.7	Variation de la fréquence autour de la valeur moyenne 216 Hz pendant une expérience	44
4.1	Schéma de principe d'une irradiation et de la mesure des γ de désintégration : Activité de la cible en fonction du temps	46

4.2	Superposition des sections efficaces du ^{58}Ni : comparaison des données expérimentales de EXFOR avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2: application aux réactions (n,2n) et (n,np)	49
4.3	Coupe horizontale du massif de plomb: carte du positionnement des cibles de nickel dans les canaux	50
4.4	Propagation des neutrons d'énergies supérieure à 3 MeV dans le massif de plomb avec trois réactions à seuil différentes: simulations et expérience	51
4.5	Taux de réaction (n,2n) sur le ^{58}Ni simulé et expérimental en fonction de la distance entre la cible de TiT et l'échantillon de nickel	52
4.6	Distribution des neutrons à l'endroit de mesure des captures neutroniques en fonction de l'énergie cinétique et du temps de ralentissement dans le bloc de plomb	54
4.7	Distribution des neutrons à l'endroit de mesure des captures neutroniques en fonction de l'énergie cinétique et de la variable $\sqrt{K(E,t)}$ en $\sqrt{eV}.\mu s$ dans le bloc de plomb	55
4.8	Ajustements pour différentes énergies par une gaussienne des distributions de flux en fonction de $\sqrt{K(E,t)}$ obtenus par une simulation utilisant la base de données JENDL3.2 pour le plomb	56
4.9	Application des méthodes "point par point" et "histogramme" de traitement des données de la matrice de $\Phi(E,t)$ simulée avec la base JENDL3.2 pour le plomb pour la détermination du paramètre K du massif	57
4.10	Détermination de la valeur moyenne du paramètre K en fonction de l'énergie cinétique du neutron pour les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb	58
4.11	Dispersions relatives en énergie $\frac{\Delta E}{E}$ de la relation liant l'énergie cinétique du neutron avec son temps de ralentissement dans le plomb: simulation avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour le plomb	60
4.12	Taux de réaction de capture expérimental normalisé et simulé d'une cible d'or de 125 μm d'épaisseur	61
4.13	Superposition des courbes de K(E) déduites des matrices énergie-temps simulées et des valeurs de K à différentes énergies déduites par les taux de capture expérimentaux et simulés avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI	63
4.14	Exemple d'application de la méthode employée pour déterminer le décalage en microseconde entre la position de la résonance de l'or à 4,9 eV du taux de capture simulé avec la base de données JENDL3.2 du plomb et l'expérience	64
4.15	Ecart en temps entre les positions des résonances temporelles des $\sigma_{(n,\gamma)}\Phi(t)$ extraites des simulations effectuées avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI et des spectres expérimentaux	64
4.16	Exemple de distribution des décalages en temps des événements appartenant à la même impulsion de neutrons	66
4.17	Exemple d'application de la détermination de l'origine des temps des neutrons pour une expérience avec le compteur à gaz ^3He	67

4.18	Exemple du taux de fission sur l' ^{233}U simulé en fonction du canal temps	69
4.19	Réponse du compteur proportionnel à hélium 3 au spectre de neutrons de GENEPI: $P_{3\text{He}} = 70 \text{ mbars}$	70
4.20	Taux de réaction (n,p) expérimentaux dans le compteur à gaz hélium 3 pour deux fréquences de GENEPI: 440 Hz et 220 Hz	72
4.21	Taux de réaction (n,p) mesurés avec le compteur proportionnel à gaz dans les canaux de mesures symétriques par rapport à l'axe formé par le doigt de gant de GENEPI . .	73
4.22	Taux de réaction dans le compteur à gaz hélium 3 expérimental et simulés utilisant les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI pour décrire le plomb du bloc	74
4.23	Réponse de la jonction silicium détectant les produits de fission de l' ^{233}U induits par la source de neutrons de GENEPI	75
4.24	Comparaison des taux de fission absolus expérimental et simulés avec la base de données JENDL3.2 pour le plomb en fonction du temps	77
4.25	Comparaison des taux de fission absolus expérimental et simulés avec la base de données JENDL3.2 pour le plomb en fonction de l'énergie cinétique des neutrons	78
4.26	Superposition des sections efficaces de fission $\sigma_f(E)$ de l' ^{233}U extraite de la base de données JENDL3.2 et moyennée $\bar{\sigma}_f(E)$ en tenant compte de la dispersion de la matrice énergie-temps du massif de plomb	79
4.27	Flux de neutrons absolus expérimental et simulés avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb	80
4.28	Taux de capture expérimental et simulés d'une cible d'or 197 de 125 μm d'épaisseur. Les simulations utilisent la base de données ENDF/B-VI pour l'Au et JENDL3.2 ou ENDF/B-VI pour le plomb	81
5.1	Superposition de la réponse temporelle enregistrée avec le photomultiplicateur pour deux expérience avec et sans veto de l'impulsion de neutrons	85
5.2	Réponse du détecteur CeF_3 pourvu d'une cible d' ^{197}Au placée devant le scintillateur .	86
5.3	Réponse du détecteur CeF_3 avec un échantillon d'or de 1250 μm d'épaisseur pour les événements dont le bit d'empilement est à la valeur 1 superposée à celle sans condition sur l'empilement	87
5.4	Spectres expérimentaux des taux de réaction de la cible d'or de 1250 μm en fonction du temps sans condition sur l'empilement et corrigé des empilements	88
5.5	Spectre en temps d'une expérience réalisée avec un échantillon d'or et de l'expérience de bruit de fond associée	89
5.6	Superposition des bruits de fond expérimental et reconstruit par la somme pondérée des taux de réaction calculés sur les matériaux constituant le bruit de fond à partir des bases de données	90
5.7	Spectre en temps de la mesure avec un échantillon d'or de 125 μm d'épaisseur, zone temporelle sur laquelle la détermination de la constante d'activation est effectuée . . .	92

5.8	Soustraction du niveau constant associé à une éventuelle activation de l'échantillon à laquelle s'ajoute celle des matériaux environnants	93
5.9	Superposition du bruit de fond dont la contribution de l'activation éventuelle des matériaux a été déduite avec le bruit de fond corrigé de l'atténuation du flux de neutrons dans l'environnement proche de l'échantillon d'or de $1250\ \mu\text{m}$	95
5.10	Schéma de principe de l'atténuation des γ du bruit de fond suivant l'échantillon placé devant le photomultiplicateur	96
5.11	Taux de réaction (n,γ) normalisé d'un échantillon d'or de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur en fonction du temps de détection	97
5.12	Courbes de la valeur moyenne et de la variance des distributions en amplitude du détecteur CeF_3 en fonction de l'énergie des neutrons pour un échantillon d'or de $1250\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et de $2\ \text{cm}^2$ ainsi que pour le bruit de fond	99
5.13	Amplitude moyenne du taux de capture sur l' ^{197}Au expérimental en fonction de l'énergie cinétique des neutrons	100
5.14	Amplitude moyenne du taux de capture sur l' ^{197}Au , l'argent et le ^{181}Ta expérimental en fonction de l'énergie cinétique des neutrons	101
5.15	Distribution en énergie du flux de neutrons simulé pour différents temps de ralentissement. Ces distributions en énergie permettent de reconstruire à un temps de détection t_r , le spectre γ émis par l'échantillon	102
5.16	Dépôt d'énergie simulé dans le scintillateur CeF_3 à différents temps de ralentissement	104
5.17	Comparaison des spectres du dépôt d'énergie simulés avec les réponses en amplitude expérimentales des taux de capture sur différents échantillons	105
5.18	Taux de réaction de capture dans un échantillon d'or de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur : superposition du spectre simulé avec celui obtenu dans l'expérience	108
5.19	Flux de neutrons total et pour $4,0\ \text{eV} < E_n < 6,2\ \text{eV}$ calculés dans l'échantillon d'or de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur avec et sans hydrogène dans la graisse optique et la colle silicone .	109
5.20	Taux de réaction total et pour $4,0\ \text{eV} < E_n < 6,2\ \text{eV}$ calculés dans l'échantillon d'or de $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur avec et sans hydrogène dans la graisse optique et la colle silicone, superposition avec le spectre de capture expérimental	110
6.1	Exemple du rapport du taux de capture simulé et du taux de capture expérimental pour l'échantillon de $500\ \mu\text{m}$ d'or	115
6.2	Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons d' ^{197}Au pour les épaisseurs $125\ \mu\text{m}$, $500\ \mu\text{m}$ et $1250\ \mu\text{m}$ mesurés et simulés avec la base de données ENDF/B-VI pour l'or	117
6.3	Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d' ^{197}Au mesurés et simulés avec la base de données ENDF/B-VI pour l'or et modifiée avec les facteurs de correction proposés	119

6.4	Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d' ^{197}Au mesurés et simulés avec la base de données ENDF/B-VI pour l'or et modifiée avec les facteurs de correction proposés entre 1 keV et 10 keV.	120
6.5	Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons d'argent d'épaisseurs 100 μm , 300 μm et 1200 μm mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	122
6.6	Taux de capture normalisés sur les échantillons d'argent d'épaisseurs 100 μm , 300 μm et 1200 μm mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2 entre 100 eV et 60 keV	123
6.7	Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons de tantale d'épaisseurs 100 μm , 200 μm et 3000 μm mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	125
6.8	Taux de capture normalisés sur les trois échantillons de tantale mesurés et simulés avec la base de données JENDL3.2 et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés	127
6.9	Taux de capture normalisés sur les trois échantillons de tantale mesurés et simulés avec la base de données JENDL3.2 et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés; observation entre 100 eV et 60 keV.	128
6.10	Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons d'indium d'épaisseurs 300 μm , 500 μm et 2000 μm mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	130
6.11	Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d'indium mesurés et simulés avec la base de données JEF2.2 et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés	133
6.12	Taux de capture normalisés sur les trois échantillons d'indium mesurés et simulés avec la base de données JEF2.2 et celle dont la section efficace est modifiée avec les facteurs de correction proposés; observation entre 100 eV et 60 keV.	134
6.13	Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur les échantillons de thorium d'épaisseurs 175 μm , 1000 μm et 4000 μm mesurés et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	136
6.14	Taux de capture normalisés en fonction de l'énergie des neutrons sur l'échantillon d'uranium naturel d'épaisseur 178 μm mesuré et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	137
6.15	Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le technétium . . .	138
6.16	Comparaison des résultats de l'expérience, GELINA et de la simulation avec la base de données JENDL3.2 pour le technétium obtenus par une évaluation utilisant le code SAMMY [2, 59]	140

6.17	Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le tungstène	141
6.18	Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le molybdène	143
6.19	Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-V, JEF2.2 et JENDL3.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le nickel	144
6.20	Taux de capture normalisés expérimental et simulés avec les bases de données ENDF/B-VI et JEF2.2 en fonction de l'énergie des neutrons sur le manganèse	146

Annexe 153

A.1	Sections efficaces de capture des isotopes 136, 138 [48], 140 et 142 du cérium extraites de la base de données JENDL3.2	155
A.2	Sections efficaces élastique et de capture de l' ¹⁹⁷ Au et de l'argent naturel	156
A.3	Comparaison des sections efficaces de capture de l'or extraites des bases de données ENDF/B-VI et d'EXFOR	156
A.4	Superposition des sections efficaces de capture de l'argent extraites de la reconstruction de l'argent naturel avec les isotopes 107 et 109 de la base ENDF/B-VI et de l'évaluation de l'argent naturel de la base par défaut disponible dans le code MCNP	157
A.5	Sections efficaces de capture de l'argent et du tantale extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	157
A.6	Sections efficaces de capture de l'indium et du thorium extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	158
A.7	Sections efficaces de capture du technétium et du tungstène extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	158
A.8	Sections efficaces de capture du molybdène et du nickel extraites des bases de données ENDF/B-VI, JEF2.2 et JENDL3.2	159
A.9	Sections efficaces de capture du manganèse extraites de ENDF/B-VI, JEF2.2	159

Liste des tableaux

2.1	Caractéristiques du GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense	14
2.2	Impuretés dans le bloc de plomb de l'ISN	15
2.3	Caractéristiques du dipôle de GENEPI	22
2.4	Réactions concernées par les irradiations de l'isotope 58 des cibles de nickel	23
2.5	Parcours et pertes d'énergie des α et de deux produits de fission dans l'uranium et le silicium	26
2.6	Structure des fichiers d'une expérience au format binaire ROOT	33
3.1	Nombre d'événements pendant et après l'impulsion de neutrons détectés avec les deux jonctions silicium	42
4.1	Nombre de neutrons émis par la cible de TiT à chaque impulsion, détermination à partir des réactions (n,2n) et (n,np) sur le ^{58}Ni avec deux méthodes différentes	48
4.2	Valeurs du paramètre K déduites des simulations avec les bases de données JENDL3.2 et ENDF/B-VI du plomb et calculées par deux méthodes différentes	58
5.1	Éléments majeurs intervenant dans la reconstruction du bruit de fond	91
5.2	Caractéristiques des échantillons utilisés avec le détecteur CeF_3	106
6.1	Résumé des accords et des désaccords observés entre la simulation utilisant la base de données ENDF/B-VI de l'or et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	118
6.2	Proposition de table de correction de la section efficace de capture de l'or de la base de données ENDF/B-VI dans la région d'énergie 2 keV-5 keV	118
6.3	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données de l'argent et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	124
6.4	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du tantale et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	126
6.5	Proposition de table de correction de la section efficace de capture du tantale de la base de données JENDL3.2 dans la région d'énergie 300 eV-23 keV	129
6.6	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données de l'indium et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	131

6.7	Proposition de table de correction de la section efficace de capture de l'indium de la base de données JEF2.2 dans la région d'énergie 1 keV-30 keV	132
6.8	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du thorium et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	135
6.9	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du technétium et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	139
6.10	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune les bases de données ENDF/B-VI et JENDL3.2 du tungstène et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	142
6.11	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du molybdène et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	143
6.12	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du nickel et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	145
6.13	Résumé des accords et des désaccords observés entre les simulations avec chacune des bases de données du nickel et l'expérience entre 0,1 eV et 30 keV	146

Annexe

153

RESUME

Les projets de réacteurs du futur permettent l'utilisation de nouveaux combustibles et montrent leur capacité à incinérer des déchets nucléaires. Ils ont redonné de l'intérêt aux sections efficaces d'un grand nombre d'éléments dans une large gamme d'énergie. Les désaccords observés entre les bases de données requièrent de nouvelles mesures dans certains cas. Les mesures complètes des sections efficaces avec une résolution élevée réclament des temps importants de faisceau et d'analyse. Cependant il est possible de déterminer un bon profil de section efficace de capture dans la région d'énergie comprise entre 0,1 eV et 30 keV grâce à un spectromètre à temps de ralentissement au plomb associé à un générateur de neutrons pulsé. Ces mesures ont été effectuées à l'ISN de Grenoble. Le flux de neutrons est mesuré avec un détecteur de fissions à l' ^{233}U et un détecteur à gaz ^3He puis comparé à des simulations Monte Carlo (code MCNP) très précises du dispositif expérimental utilisant différentes bases de données du plomb. Nous avons montré par cette méthodologie que nous pouvons tester la section efficace de diffusion du plomb avec une précision de l'ordre de 1,5%. Les taux de capture, mesurés avec un scintillateur CeF_3 couplé à un photomultiplicateur, sont comparés à des simulations utilisant différentes bases de données pour les échantillons. Des matériaux de référence (Au, Ag, In, Ta) ont fait l'objet de mesures, des matériaux présents dans les cœurs de réacteurs ont pu être testés: ^{232}Th , U, ^{99}Tc , ainsi que des matériaux de structure: W, Mo, Ni, Mn. La précision sur la validation des bases de données est de 5%. Ces tests sont enrichis par des mesures sur plusieurs épaisseurs de cible. Les accords et les désaccords des bases de données avec l'expérience sont systématiquement décrits. Enfin, pour certains éléments, une table de correction de la section efficace de capture extraite de la base de données appropriée est proposée, nous en présentons les résultats.

TITLE

Cross section data base validation using a lead slowing down time spectrometer between 0,1 eV and 30 keV. Methodology and Results

ABSTRACT

Projects dealing with future reactors consider using new fuels and demonstrate the ability of such reactors to incinerate nuclear waste. These projects have triggered new interest in cross section measurements for a large number of elements over a wide energy range. In some cases, existing data bases disagree, making new measurements necessary. Complete high resolution cross section measurements require both large beam times, and large data analysis times. However, a good capture cross section profile between 0,1 eV and 30 keV can be obtained using a lead slowing down time spectrometer in association with a pulsed neutron generator. Such measurements have been performed at the Institut des Sciences Nucleaires (ISN) at Grenoble. The neutron flux is measured with a ^{233}U fission detector and an ^3He gas detector and the results are compared to very precise Monte Carlo simulations (MCNP code) of the experimental set up, using several data bases for lead. We have shown that, with this method, the scattering cross section on lead can be tested with a precision of the order of 1,5%. Capture rates, measured with a CeF_3 scintillator coupled to a photomultiplier, are compared to simulation results using different data bases for the samples. Reference materials (Au, Ag, In, Ta) have been measured, materials that are present in the core of reactors (^{232}Th , U, ^{99}Tc) have been tested, as well as structure materials (W, Mo, Ni, Mn). Data bases are validated with a precision of 5%. Measurements done for different target thicknesses complete the data. Areas of agreement and disagreement between experimental results and data bases are systematically described. Finally, a correction table for the capture cross sections extracted from the appropriate data base is obtained and presented, for some elements.

MOTS-CLES

Réacteur hybride, Taux de capture, MCNP, Sections efficaces, Simulations précises, Validation, Plomb, Comparaisons, Relation énergie-temps, Auto-absorption, Corrections